### PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number:

2002-324676

(43) Date of publication of application: 08.11.2002

(51)Int.Cl.

H05B 33/14 C09K 11/06 G09F 9/30 H05B 33/02 H05B 33/12 H05B 33/22

(21)Application number : 2001-129284

(71)Applicant: KONICA CORP

(22)Date of filing:

26.04.2001

(72)Inventor: SUZURISATO YOSHIYUKI

**GENDA KAZUO** 

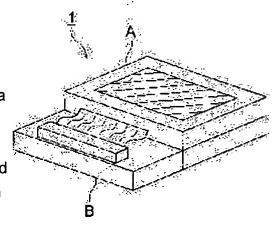
**OSHIYAMA TOMOHIRO** 

UEDA NORIKO KITA HIROSHI

(54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT, LIGHT EMITTING SOURCE, LIGHTING DEVICE, DISPLAY DEVICE AND LIGHT-EMISSION METHOD

(57)Abstract:

element with maximum light-emitting wavelength of not more than 415 nm of high luminous efficiency which saves power, emits sheet light and can be used for manufacturing a flexible device, as well as a light emitting source, a lighting device, a display device and a light-emitting method using the organic EL element. SOLUTION: With the organic EL element having a pair of electrodes and an organic compound thin film pinched by the pair of the electrodes, the organic compound thin film is provided with a light emitting layer and an adjacent layer adjacent to the light emitting layer, with fluorescence maximum wavelength of each of light emitting material constituting the light emitting layer and



an adjacent layer material constituting the adjacent layer of not more than 415 nm.

#### \* NOTICES \*

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3. In the drawings, any words are not translated.

#### **DETAILED DESCRIPTION**

[Detailed Description of the Invention] [0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the organic electroluminescent element (an organic EL device is called hereafter) from which the fluorescence maximum wave length used for the light source of a flat display, the flat-surface light source for lighting and an optical storage, an electrophotography copying machine, an optical-communication processing device, etc. gets luminescence of 415nm or less.

#### [0002]

[Description of the Prior Art] Conventionally, as the flat-surface mold light source, although the inorganic electroluminescent element has been used, in order to make an inorganic electroluminescent element drive, the high voltage of an alternating current is needed.

[0003] The organic EL device developed recently the thin film (organic compound thin film) containing the organic compound of fluorescence Have the configuration inserted in cathode and an anode plate, and an exciton (exciton) is made to generate by making an electron and an electron hole pour in and recombine with said organic compound thin film. the component which emits light using emission (fluorescence and phosphorescence) of the light at the time of this exciton deactivating -- it is -- severalV- dozens -- light can be emitted by about V low battery, since it is a self-luminescence mold, it is rich in an angle-of-visibility dependency, and visibility is high. Furthermore, since it is the solid-state component of a thin film mold, it is observed also from viewpoints, such as space-saving, and the expansion to utilization research is started.

[0004] Organic EL devices various until now are reported. for example, the thing using the single crystal anthracene etc. as an organic compound of fluorescence given in U.S. Pat. No. 3,530,325, the thing which combined the hole injection layer and luminous layer of a publication with JP,59-194393,A, the thing which combined the hole injection layer and electron injection transportation layer of a publication with JP,63-295695,A, and Jpn.Journal of Applied Phisycs, vol127, and No.2 — what combined [ page / 269-271st ] the electron hole moving bed, luminous layer, and electronic transition layer of a publication is indicated, respectively.

[0005] However, a large number [problems which should be solved, such as the further improvement in an energy conversion efficiency and luminous efficiency, and grant of the stability of the organic compound thin film in the passage of time]. Especially the luminous efficiency of red luminescence is bad, and the further improvement is needed.

[0006] Although the organic EL device which obtains red luminescence by carrying out color conversion of the luminescence from the organic compound thin film which emits light in blue or a bluish green color by the fluorochrome is indicated by JP,3-152897,A, there are few fluorochromes which have absorption in blue or bluish green, and have fluorescence in red, and since they are performing color conversion in red from blue gradually using two or more fluorochromes, they cannot necessarily satisfy luminous efficiency.

[0007] The organic EL device in which it is applied also to the information-display device and white

lighting like a display, and deals is indicated by emitting light to purple-blue luminescence thru/or a purple/blue field, and combining with EP1067165A the fluorescent substance which absorbs this luminescence. Since this can use for a purple-blue field the fluorescent substance which has absorption, conversion in red becomes convertible not through a multistage story at a single step. Therefore, compared with the technique of an indication, the conversion efficiency to red is high to said JP,3-152897,A, and it can be provided with power saving full color display and white lighting. However, the further amelioration is called for about the luminous efficiency of purple-blue luminescence from an organic compound thin film thru/or luminescence of a purple/blue field.

[0008] Although the example which carried out ultraviolet luminescence with the organic EL device also has the technique otherwise indicated by JP,11-26159,A, it is the organic EL device of a monolayer configuration, and external ejection quantum efficiency is 0.1% or less, and luminous efficiency is very low.

[0009] On the other hand, as an ultraviolet luminescence device in fields other than an organic EL device, the semiconductor device using the nitride system compound semiconductor which has a high energy band gap is developed so that it may be mentioned to JP,10-321908, A. As an example of a device using the semiconductor device which has a high energy band gap, light emitting diode (LED), semiconductor laser, etc. to which a purple-blue color system can emit light are mentioned. [0010] However, it is difficult for the semiconductor device using a nitride system compound semiconductor to make a single crystal form unlike semiconductor devices, such as GaAs, GaP, and InGaAlAs, in order to obtain the single crystal film of a crystalline good nitride system compound semiconductor -- MOCVD -- law and HDVPE -- making it form through a buffer layer using law on silicon on sapphire is performed. Although it is possible to offer the luminescence device which has luminescence maximum wave length by using these semiconductor devices in near-ultraviolet light, i.e., purple-blue luminescence, or 415nm or less, since LED needs the single crystal film of an inorganic semi-conductor, it is very difficult to produce and also requires the energy of manufacture. Furthermore, since it is the point light source, field-like luminescence is difficult, and since it is the single crystal film further, it can be said that production of the flexible device which used the resin film etc. as the base is almost impossible.

[0011] Moreover, it also sets to an inorganic EL element recently, and is The. 10th international workshop on inorganic and organic Although research of an ultraviolet luminescence device is made as indicated by the collection P-19 of electroluminescence (EL'00) drafts, the top which usually needs the about [ 100V ] high voltage, the energy efficiency of luminescence is also low and the inorganic EL element of loading to mobile computing devices etc. is unsuitable. [0012]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] In view of the above-mentioned technical problem, the purpose of this invention shape[ of a field ]-emits light by power saving, production of a flexible device is possible and luminescence maximum wave length with high luminous efficiency is offering the luminescence light source and the lighting system using an organic EL device and this organic EL device, a display device, and the luminescence approach 415nm or less.

[Means for Solving the Problem] The purpose of above-mentioned this invention was attained by the following configurations.

[0014] 1. It is the organic electroluminescent element characterized by the fluorescence maximum wave length of each adjacent layer ingredient which constitutes the luminescent material which has the adjacent layer which said organic compound thin film adjoins with a luminous layer and said luminous layer in the organic electroluminescent element which has on a base the organic compound thin film pinched by the electrode of a pair and the electrode of this pair, and constitutes said luminous layer, and said adjacent layer being 415nm or less.

[0015] 2. Organic electroluminescent element given in the above 1 characterized by maximum luminescence wavelength of electroluminescence of said organic electroluminescent element being 415nm or less.

- [0016] 3. Organic electroluminescent element given in the above 1 or 2 characterized by for said luminous layer being electronic transportation mold luminous layer, and said adjacent layer being electron hole transportation layer.
- [0017] 4. Organic electroluminescent element given in the above 3 whose fluorescence maximum wave length of electronic transportation ingredient which side which said electron hole transportation layer touches has electronic transportation layer as adjacent layer of said electronic transportation mold luminous layer of the opposite side, and constitutes said electronic transportation layer is characterized by being 415nm or less.
- [0018] 5. Organic electroluminescent element given in the above 3 or 4 characterized by being short wavelength rather than fluorescence maximum wave Cho of luminescent material from which ionization potential of electron hole transportation ingredient which constitutes said electron hole transportation layer is 5.7eV or less, and fluorescence maximum wave length of said electron hole transportation ingredient constitutes said electronic transportation mold luminous layer.
- [0019] 6. Organic electroluminescent element given in the above 5 whose ionization potential of said electron hole transportation ingredient is characterized by being smaller than ionization potential of said luminescent material.
- [0020] 7. Organic electroluminescent element given in the above 1 or 2 characterized by for said luminous layer being electron hole transportation mold luminous layer, and said adjacent layer being electronic transportation layer.
- [0021] 8. Organic electroluminescent element given in the above 7 whose fluorescence maximum wave length of electron hole transportation ingredient which side which said electron hole transportation layer touches has electronic transportation layer as adjacent layer of said electronic transportation mold luminous layer of the opposite side, and constitutes said electron hole transportation layer is characterized by being 415nm or less.
- [0022] 9. Organic electroluminescent element given in the above 7 or 8 characterized by being short wavelength rather than fluorescence maximum wave Cho of luminescent material from which electron affinity of electronic transportation ingredient which constitutes said electronic transportation layer is 2.5eV or more, and fluorescence maximum wave length of said electronic transportation ingredient constitutes said electron hole transportation mold luminous layer.
- [0023] 10. An organic electroluminescent element given in the above 9 whose electron affinity of said electronic transportation ingredient is characterized by being larger than the electron affinity of said luminescent material.
- [0024] 11. An organic electroluminescent element given in any 1 term of the above 1-10 characterized by each glass transition point of all the ingredients that constitute said organic compound thin film being 100 degrees or more.
- [0025] 12. An organic electroluminescent element given in any 1 term of the above 1-11 characterized by said base being a resin film.
- [0026] 13. An organic electroluminescent element given in any 1 term of the above 1-12 characterized by the external ejection effectiveness in the room temperature of luminescence of said organic electroluminescent element being 2% or more.
- [0027] 14. An organic electroluminescent element given in any 1 term of the above 1-13 characterized by having the color transducer changed into a color which absorbs luminescence from said luminous layer and is different from this luminescence.
- [0028] 15. An organic electroluminescent element given in the above 14 characterized by luminescence from said luminous layer being the color of a purple-blue field.
- [0029] 16. An organic electroluminescent element given in the above 14 or 15 said whose color transducers are characterized by containing an inorganic fluorescent substance.
- [0030] 17. The luminescence light source constituted from an organic electroluminescent element of a publication by any 1 term of the above 1-16.
- [0031] 18. The lighting system constituted from an organic electroluminescent element of a publication by any 1 term of the above 1-16.

[0032] 19. 1st Organic Electroluminescent Element Given in above 14 Which is Blue Transducer Which Said Color Transducer Absorbs Luminescence from Said Luminous Layer, and Changes Blue, The 2nd organic electroluminescent element given in the above 14 which is the green transducer which said color transducer absorbs luminescence from said luminous layer, and changes green, The full color display device constituted from the 3rd organic electroluminescent element of a publication by the above 14 which is the red transducer which said color transducer absorbs luminescence from said luminous layer, and changes into red.

[0033] 20. It is the luminescence approach characterized by for the fluorescence maximum wave length of each adjacent layer ingredient which constitutes the luminescent material which has the adjacent layer by which said organic compound thin film adjoins a luminous layer and said luminous layer in the luminescence approach of applying an electrical potential difference and making it emitting light on a base to the electrode of said pair of the organic electroluminescent element which has the organic compound thin film pinched by the electrode of a pair and the electrode of this pair, and constitutes said luminous layer, and said adjacent layer to be 415nm or less.

[0034] 21. It is the organic electroluminescent element which has the adjacent layer which said organic compound thin film adjoins with a luminous layer and said luminous layer in the organic electroluminescent element which has on a base the organic compound thin film pinched by the electrode of a pair, and the electrode of this pair, and is characterized by the maximum luminescence wavelength of the electroluminescence of said organic electroluminescent element being 415nm or less. [0035] 22. It is the organic electroluminescent element which has an adjacent layer per each which said organic compound thin film adjoins at the both sides of a luminous layer and said luminous layer in the organic electroluminescent element which has on a base the organic compound thin film pinched by the electrode of a pair, and the electrode of this pair, and is characterized by the maximum luminescence wavelength of the electroluminescence of said organic electroluminescent element being 415nm or less. [0036] Hereafter, this invention is explained to a detail. The organic EL device of this invention has on a base the organic compound thin film pinched by the electrode of a pair, and the electrode of this pair. 100371 Said organic compound thin film is two or more layer configuration. However, in this two or more layer configuration, layers other than the organic substance (for example, a lithium fluoride layer, the layer of an inorganic metal salt, or the layer containing them etc.) may be arranged in the location of arbitration.

[0038] the adjacent layer which adjoins the luminous layer and this luminous layer which have the field (luminescence field) which the electron and electron hole which were poured in from the electrode of said pair recombine said organic compound thin film, and emits light — it has two-layer at least. Said luminescence field may be the whole layer of a luminous layer, and may be a part of thickness of a luminous layer. Moreover, you may be the interface of a luminous layer and an adjacent layer. In this invention, when a luminescence field covers two-layer, one layer of either is caught with a luminous layer, and one more layer is caught with the adjacent layer of said luminous layer.

[0039] Although later mentioned about said adjacent layer, it can roughly classify into an electron hole transportation layer and an electronic transportation layer according to the function. When a function category is carried out still more finely, there are a hole injection layer, an electron hole transportation layer, an electronic blocking layer, an electronic injection layer, an electronic transportation layer, an electron hole blocking layer, etc.

[0040] And in this invention, the fluorescence maximum wave length of each adjacent layer ingredient which constitutes the luminescent material which constitutes said luminous layer, and said adjacent layer is 415nm or less.

[0041] In this invention, the fluorescence maximum wave length who considered as the membranous condition by approaches, such as a spin coat, a cast coat, or an ink jet, if it was the compound which can vapor-deposit said luminescent material or said adjacent layer ingredient as the fluorescence maximum wave length of luminescent material or an adjacent layer ingredient is 415nm or less and was the vacuum evaporationo film and a high molecular compound, and measured in the film concerned is 415nm or less.

[0042] Fluorescence maximum wave Cho is wavelength which gives the maximal value in a fluorescence spectrum, and is an index which specifies the physical properties of the ingredient. When there is two or more maximum wave length, the long wavelength side is made into fluorescence maximum wave Cho. That is, even when there are two or more excitation states which give fluorescence, the thing of the minimum excitation state with the lowest energy is meant. The reinforcement of fluorescence is not related. Also when fluorescence intensity is very weak, fluorescence maximum wave length should just be 415nm or less. However, as for a kind at least, it is desirable among luminescent material that a fluorescence quantum yield is 0.5 or more. [0043] Moreover, the maximum luminescence wavelength of electroluminescence of the organic EL device of this invention is 415nm or less. The maximum luminescence wavelength of electroluminescence is wavelength of wavelength which gives the maximal value in an emission spectrum in the luminescence concerned when an electrical potential difference is impressed to the electrode of the pair of an organic EL device, an electron and an electron hole are poured in from each electrode and they recombined and emit light by the luminous layer. When there is two or more maximum luminescence wavelength, fluorescence intensity is the thing of the strongest maximum luminescence wavelength.

[0044] As a color of such electroluminescence, it is desirable that it is purple-blue luminescence. The purple-blue of purple-blue luminescence is Purplish, when it measures with measuring instruments, such as spectral radiance meter CS-1000 (Minolta make), consequently a coordinate applies to a CIE chromaticity coordinate ("new edition color color science handbook" drawing 4 .16 [ 108-page ] (the edited by Color Science Association of Japan, University of Tokyo Press, 1985)). Blue (purple/blue) or Bluish The case where it is in the field of Purple (purple-blue) is said.

[0045] Said luminous layer can pour in an electron hole from an anode plate by the hole injection layer, the electron hole transportation layer, or the electron hole transportation mold luminous layer at the time of (1) electric-field impression. And the impregnation function in which an electron can be poured in from cathode by the electronic transportation layer, the electronic injection layer, or the electronic transportation mold luminous layer, (2) The interior of a luminous layer is provided with the place of the recombination of the transportation function and (3) electrons to which the poured-in charge (an electron and electron hole) is moved by the force of electric field, and an electron hole, and it has the luminescence function to tie this to luminescence etc. However, although size may be in the transportation function in which an electron hole is poured in, easy and an electron are poured in, and a difference may be in easy, and it is expressed with the mobility of an electron hole and an electron, what has the function to which one of charges are moved is desirable. That is, what has the thing (an electronic transportation mold luminous layer is called) or electron hole transportation ability which has electronic transportation ability (an electron hole transportation mold luminous layer is called) is desirable.

[0046] An electronic transportation mold luminous layer is a luminous layer which has electronic transportation ability, and it has the recombination field and luminescence field of an electron hole and an electron in an interface with the electron hole transportation layer, hole injection layer, or electronic blocking layer which adjoins fundamentally. However, luminescence is luminescence from the luminescent material of an electronic transportation mold luminous layer.

[0047] An electron hole transportation mold luminous layer is a luminous layer which has electron hole transportation ability, and it has the recombination field and luminescence field of an electron hole and an electron in an interface with the electronic transportation layer which adjoins fundamentally, an electronic injection layer, or an electron hole blocking layer. However, luminescence is luminescence from the luminescent material of an electron hole transportation mold luminous layer.

[0048] In this invention, although the desirable example of the lamination of the electrode of a pair and an organic compound thin film is shown below, it is not limited to this.

(i) An anode plate / electron hole transportation layer / electronic transportation mold luminous layer / cathode (ii) An anode plate / electron hole transportation layer / electronic transportation mold luminous layer / electronic transportation layer / cathode (iii) anode plate / hole injection layer / electron hole

transportation layer / electronic transportation mold luminous layer / cathode (iv) anode plate / electron hole transportation mold luminous layer / electronic transportation layer / electronic transportation layer / electronic transportation layer / electronic transportation layer / cathode (vi) An anode plate / hole injection layer / electron hole transportation layer / electronic transportation mold luminous layer / electronic transportation mold luminous layer / electronic transportation layer / cathode (viii) anode plate / an electron hole transportation mold luminous layer / electronic layer / electron hole blocking layer / electronic transportation layer / electronic layer / electron hole transportation mold luminous layer / electron hole transportation mold luminous layer and an electronic transportation mold luminous layer are luminous layers in this invention, and the layer which adjoins each other in contact with this luminous layer is an adjacent layer.

[0049] What uses the large (4eV or more) metal, the alloy, the electrical conductivity compounds, and such mixture of a work function as electrode material as an anode plate in an organic EL device is used preferably. As an example of such electrode material, conductive transparent materials, such as metals, such as Au, CuI, indiumtinoxide (ITO), and SnO2, ZnO, are mentioned. Moreover, the ingredient which can produce the transparence electric conduction film with amorphous substances, such as IDIXO (In2O3-ZnO), may be used. This anode plate may form a pattern through the mask of a desired configuration at the time of vacuum evaporationo and sputtering of (100-micrometer or more extent) and the above-mentioned electrode material, when a thin film may be made to form such electrode material by approaches, such as vacuum evaporationo and sputtering, and the pattern of a desired configuration may be formed by the photolithography method or it seldom needs pattern precision. When taking out luminescence from this anode plate, it is desirable to make permeability larger than 10%, and below hundreds of ohms / \*\* of the sheet resistance as an anode plate are desirable. Although thickness is furthermore based also on an ingredient, 10nm - 1 micrometer is usually preferably chosen in 10-200nm.

[0050] What, on the other hand, uses the small (4eV or less) metal (an electron injectional metal is called), the alloy, the electrical conductivity compounds, and such mixture of a work function as electrode material as cathode is used. As an example of such electrode material, a sodium and sodiumpotassium alloy, magnesium, a lithium, magnesium / copper mixture, magnesium / silver mixture, magnesium / aluminum mixture, magnesium / indium mixture, aluminum / aluminum oxide (aluminum 203) mixture, an indium, a lithium / aluminum mixture, a rare earth metal, etc. are mentioned. In these, the mixture of the point of endurance over electron injection nature, oxidation, etc. to an electron injectional metal and the second metal which is a metal with it, for example, magnesium / silver mixture, magnesium / aluminum mixture, magnesium / indium mixture, aluminum / aluminum oxide (aluminum 203) mixture, a lithium / aluminum mixture, aluminum, etc. are suitable. [ the large value of a work function and I more stable than this I This cathode can produce such electrode material by making a thin film form by approaches, such as vacuum evaporationo and sputtering. Moreover, below hundreds of ohms / \*\* of the sheet resistance as cathode are desirable, and 10nm - 1 micrometer of thickness is usually preferably chosen in 50-200nm. In addition, in order to make luminescence penetrate, if either the anode plate of an organic EL device or cathode is transparent or translucent, it improves [luminous efficiency ] and is convenient.

[0051] Next, in this invention, the impregnation layer as an adjacent layer which adjoins a luminous layer, an electron hole transportation layer, an electronic transportation layer, etc. are explained. [0052] An impregnation layer is prepared if needed, has an electronic injection layer and a hole injection layer, and may be made to exist like the above between an anode plate, a luminous layer, or an electron hole transportation layer and between cathode, a luminous layer, or an electronic transportation layer. [0053] An impregnation layer is a layer prepared between an electrode and an organic layer for a driver voltage fall or the improvement in luminous efficiency, it is indicated by piece [2nd] chapter "an electrode material" (123rd page - the 166th page) "an organic EL device and its industrialization front

line (November 30, 1998 N tea S company issue)" 2 at the detail, and there are a hole injection layer (anode plate buffer layer) and an electronic injection layer (cathode buffer layer).

[0054] As for an anode plate buffer layer (hole injection layer), the giant-molecule buffer layer using conductive polymers with which the detail is indicated and is represented by the phthalocyanine buffer layer represented as an example at a copper phthalocyanine and the vanadium oxide, such as an oxide buffer layer, an amorphous carbon buffer layer, the poly aniline (EMERARU DIN), and the poly thiophene, etc. is mentioned to JP,9-45479,A, 9-260062, 8-288069, etc.

[0055] As for a cathode buffer layer (electronic injection layer), the oxide buffer layer with which the detail is represented by the metal buffer layer which is indicated and is specifically represented to strontium, aluminum, etc., the alkali-metal-compound buffer layer represented by lithium fluoride, the alkaline earth metal compound buffer layer represented by magnesium fluoride, and the aluminum oxide is mentioned to JP,6-325871,A, 9-17574, 10-74586, etc.

[0056] As for the above-mentioned buffer layer (impregnation layer), it is desirable that it is the very thin film, and although based also on a material, the thickness has the desirable range of 0.1-100nm. [0057] A blocking layer is prepared like the above if needed besides the basic configuration layer of an organic compound thin film. For example, there is an electron hole inhibition (hole block) layer indicated by the 237th page of JP,11-204258,A, 11-204359, and "the organic EL device and its industrialization front line (November 30, 1998 N tea S company issue)" etc.

[0058] The recombination probability of an electron and an electron hole can be raised by preventing an electron hole, an electron hole blocking layer being an electronic transportation layer in large semantics, and the capacity to convey an electron hole consisting of a remarkable small ingredient, having the function to convey an electron, and conveying an electron.

[0059] The recombination probability of an electron and an electron hole can be raised by preventing an electron, an electronic blocking layer being an electron hole transportation layer in large semantics, and the capacity to convey an electron consisting of a remarkable small ingredient on the other hand, having the function to convey \*\*\*\*\*\*, and conveying an electron hole.

[0060] It becomes an electron hole transportation layer from the ingredient which has the function to convey an electron hole, and a hole injection layer and an electronic blocking layer are also contained in an electron hole transportation layer in large semantics.

[0061] Although two or more layers can be prepared, in the organic electroluminescent element of this invention, a luminous layer is an electronic transportation mold luminous layer, and a monolayer or when the adjacent layer is an electron hole transportation layer, it is desirable [an electron hole transportation layer] that the fluorescence maximum wave length of the electron hole transportation ingredient which constitutes this electron hole transportation layer is 415nm or less. Moreover, as for the side which touches said electron hole transportation layer further in the case of such lamination, it is desirable that the fluorescence maximum wave length of the electronic transportation ingredient which has an electronic transportation layer as an adjacent layer of said electronic transportation mold luminous layer of the opposite side, and constitutes this electronic transportation layer is 415nm. That is, it is desirable that the fluorescence maximum wave length of the ingredients of all three which sandwiched the luminous layer layers is 415nm or less. It is as having mentioned above about fluorescence maximum wave Cho.

[0062] As an electron hole transportation ingredient 415nm or less, especially a limit does not have fluorescence maximum wave length, and he can choose and use the thing of arbitration in photoconductive material conventionally out of the well-known thing used for the hole injection layer of what commonly used as a charge impregnation transportation ingredient of an electron hole, or an EL element, and an electron hole transportation layer.

[0063] An electron hole transportation ingredient may have impregnation of an electron hole, transportation, or electronic obstruction nature, and may be any of the organic substance and an inorganic substance as an electron hole transportation ingredient -- for example, a triazole derivative, an OKISA diazole derivative, an imidazole derivative, the poly aryl alkane derivative, a pyrazoline derivative and a pyrazolone derivative, a phenylenediamine derivative, an arylamine derivative, an

amino permutation chalcone derivative, an oxazole derivative, a styryl anthracene derivative, and full -me -- non, a derivative, a hydrazone derivative, a stilbene derivative, a silazane derivative, an aniline
system copolymer and conductive polymer oligomer, especially thiophene oligomer, etc. are mentioned.
[0064] As an electron hole transportation ingredient, although the above-mentioned thing can be used, it
is desirable to use a porphyrin compound, an aromatic series tertiary-amine compound and a styryl
amine compound, especially an aromatic series tertiary-amine compound.
[0065] As an example of representation of the above-mentioned aromatic series tertiary-amine

compound and a styryl amine compound N, N, N', the N'-tetrapod phenyl -4, 4'-diamino phenyl; N, N'-diphenyl-N, N'-bis(3-methylphenyl)-[1 and 1'-biphenyl]-4, 4'-diamine (TPD); 2 and 2-bis(4-G p-tolylamino phenyl) propane; 1 and 1-screw (4-G p-tolylamino phenyl) cyclohexane; -- N, N, N', and N'-the-tetra-p-tolyl -4 and 4'-diamino biphenyl; 1 -- a 1-bis(4-G p-tolylamino phenyl)-4-phenylcyclohexane; screw Phenylmethane; (4-dimethylamino-2-methylphenyl) A screw (4-G p-tolylamino phenyl) phenylmethane; -- N and N'-diphenyl-N and N'- JI (4-methoxypheny) -4 and 4'-diamino biphenyl; -- N, N, N', and N'-- the-tetra-phenyl-4, 4'-diamino diphenyl ether; 4, and 4'-screw KUODORI phenyl; N, N, and N-Tori (Diphenylamino) Amine; 4- (p-tolyl) (G p-tolylamino)-4'-[4-(G p-tolylamino) styryl] stilbene; A 4-N, N-diphenylamino-(2-diphenyl vinyl) benzene; 3-methoxy-4'-N, and N-diphenylamino still benzene; N-phenyl carbazole, Furthermore, the thing which has in intramolecular two fused aromatic rings indicated by the U.S. Pat. No. 5061569 specification, For example, 4 and 4' bis [-] [N-(1-naphthyl)-N-phenylamino] biphenyl (NPD), JP,4-308688,A -- indicating -- having -- \*\*\*\* -- a triphenylamine -- a unit -- three -- a \*\* -- a starburst -- a mold -- connecting -- having had -- four -- four -- '-- '- tris -- [-N - (3-methylphenyl) - N - phenylamino -- ] -- a triphenylamine (MTDATA) -- etc. -- mentioning -- having

[0066] The polymeric materials which furthermore introduced these ingredients into the macromolecule chain, or used these ingredients as the principal chain of a macromolecule can also be used.

[0067] Moreover, p mold-Si, p mold - Inorganic compounds, such as SiC, can also be used as a hole-

injection ingredient and an electron hole transportation ingredient.

[0068] while an electron hole transportation ingredient has electron hole transportation ability -- and the long wave of luminescence -- merit-izing -- protecting -- in addition -- and the compound which is high Tg is desirable.

[0069] Such an organic compound is obtained by acting as the non-plane target of the pi electron flat surface according to effectiveness, such as steric hindrance, as a concrete example. Introducing the substituent of steric hindrance nature into the ortho position (it having seen from the nitrogen atom) of the aryl group of a thoria reel amine as an example is mentioned. Angle of torsion is reinforced by this. [0070] That is, without lowering Tg of a high Tg electron hole transportation compound by arranging effectively in an organic compound a substituent with steric hindrance, such as a peri position hydrogen atom of a methyl group, t-butyl, an isopropyl group, and a naphthyl group, although the fall of some electron hole transportation ability is seen, the electron hole transportation compound which has short wavelength luminescence is obtained. However, a substituent is not limited above.

[0071] Moreover, what (in for example, the case of a triphenylamine meta position of a phenyl group) is also introduced to the extent that it un-conjugates, when introducing the radical conjugated to a ring is obtained.

[0072] Thus, although the example of a compound of the electron hole transportation ingredient which has a steric hindrance substituent, and a disconjugation mold electron hole transportation ingredient is given to below, it does not limit to this.

[0073]

[Formula 1]

1-2

1-3

1-4

$$CH_3$$

[0074] [Formula 2]

$$\begin{array}{c|c} & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\$$

$$(t)C_4H_9O CH_3$$

$$OC_4H_9(t)$$

### 1-7

$$CH_3$$
  $H_3C$ 
 $C_4H_9(t)$ 
 $CH_3$   $H_3C$ 

### 1-8

[0075] [Formula 3]

### 1-11

### 1-12

### [0076] [Formula 4]

[0077] [Formula 5]

CH3

[0078] [Formula 6]

[0079] ' [Formula 7]

[0080] [Formula 8]

[0081] [Formula 9]

[0082] [Formula 10]

[0083] [Formula 11]

[0084] this electron hole transportation layer -- the above-mentioned electron hole transportation ingredient -- for example, vacuum evaporation technique, a spin coat method, the cast method, the ink jet method, and LB -- it can form by thin-film-izing by well-known approaches, such as law. Although there is especially no limit about the thickness of an electron hole transportation layer, it is usually 5nm - about 5 micrometers. This electron hole transportation layer may be 1 layer structure which consists of a kind of the above-mentioned ingredient, or two sorts or more.

[0085] About an electron hole transportation ingredient in case an electron hole transportation layer does not adjoin a luminous layer, fluorescence maximum wave length may exceed 415nm, and there is especially no limit. Conventionally, in photoconductive material, the thing of arbitration can be chosen and used out of the well-known thing used for the hole injection layer of what commonly used as a charge impregnation transportation ingredient of an electron hole, or an EL element, and an electron hole transportation layer.

[0086] In this invention, when a luminous layer is an electronic transportation mold luminous layer and an adjacent layer is an electron hole transportation layer, the ionization potential of the electron hole transportation ingredient which constitutes said electron hole transportation layer is 5.7eV or less, and it is more desirable than fluorescence maximum wave Cho of the luminescent material from which fluorescence maximum wave Cho of said electron hole transportation ingredient constitutes said electronic transportation mold luminous layer that it is short wavelength. Moreover, it is desirable that the ionization potential of said electron hole transportation ingredient is smaller than the ionization potential of said luminescent material in this case.

[0087] The ionization potential of an electron hole transportation ingredient is the value which was defined by energy required to carry out vacuum level emission of the electron in the HOMO (highest occupied molecular orbital) level of a compound, and formed the vacuum evaporation film with the electron hole transportation ingredient concerned, formed the spin coat film, or was measured directly by photoelectron spectroscopy in the condition with fine particles.

[0088] It is as [ Cho / fluorescence maximum wave ] above-mentioned. Moreover, it means that it is easy to be sufficient [ begin ] in an electron from HOMO level more as ionization potential being small, namely, means that it is easy to oxidize.

[0089] It becomes an electronic transportation layer from the ingredient which has the function to convey an electron, and an electronic injection layer and an electron hole blocking layer are also contained in an electronic transportation layer in large semantics.

[0090] an electronic transportation layer -- a monolayer -- or two or more layers can be prepared. In this invention, a luminous layer is an electron hole transportation mold luminous layer, and when it is the adjacent layer by which an electronic transportation layer adjoins a luminous layer, it is desirable that

the fluorescence maximum wave length of the electronic transportation ingredient which constitutes the electronic transportation layer concerned is 415nm or less. Moreover, as for the side which touches said electronic transportation layer further, in the case of such lamination, it is desirable that the fluorescence maximum wave length of the electron hole transportation ingredient which has an electron hole transportation layer as an adjacent layer of said electron hole transportation mold luminous layer of the opposite side, and constitutes this electron hole transportation layer is 415nm. That is, the fluorescence maximum wave length of the ingredients of all three which sandwiched the luminous layer layers is 415nm or less. It is as having mentioned above about fluorescence maximum wave Cho. [0091] As an electronic transportation ingredient 415nm or less, especially a limit does not have fluorescence maximum wave length, and he can choose and use the thing of arbitration out of a well-known thing.

[0092] As an example of this electronic transportation ingredient, heterocycle tetracarboxylic acid anhydrides, such as a phenanthroline derivative, a bipyridine derivative, a nitration fluorene derivative, a diphenyl quinone derivative, a thiopyran dioxide derivative, and naphthalene perylene, a carbodiimide, a deflection ORENIRIDEN methane derivative, anthra quinodimethan and an anthrone derivative, an OKISA diazole derivative, etc. are mentioned. Furthermore, in the above-mentioned OKISA diazole derivative, the thiadiazole derivative which permuted the oxygen atom of an oxadiazole ring by the sulfur atom, and the quinoxaline derivative which has the quinoxaline ring known as an electron withdrawing group can also be used as an electronic transportation ingredient and an electron injection ingredient.

[0093] The polymeric materials which furthermore introduced these ingredients into the macromolecule chain, or used these ingredients as the principal chain of a macromolecule can also be used. [0094] Moreover, a metal complex can also be used. while it has electronic transportation ability as an electronic transportation ingredient of this invention — and the long wave of luminescence — merit-izing — protecting — in addition — and the compound which is high Tg is desirable.

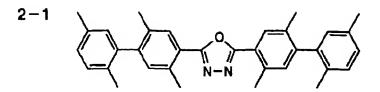
[0095] Such an organic compound is obtained by acting as the non-plane target of the pi electron flat surface according to effectiveness, such as steric hindrance, as a concrete example. Introducing the substituent of steric hindrance nature into the ortho position (it having seen from the nitrogen atom) of the aryl group of a thoria reel amine as an example is mentioned. Angle of torsion is reinforced by this. [0096] That is, without lowering Tg of a high Tg electronic transportation compound by arranging effectively in an organic compound a substituent with steric hindrance, such as a peri position hydrogen atom of a methyl group, t-butyl, an isopropyl group, and a naphthyl group, although the fall of some electronic transportation ability is seen, the electronic transportation compound which has short wavelength luminescence is obtained. However, a substituent is not limited above.

[0097] Moreover, what (in for example, the case of a triphenylamine meta position of a phenyl group) is also introduced to the extent that it un-conjugates, when introducing the radical conjugated to a ring is obtained.

[0098] Thus, although the example of a compound of the electronic transportation ingredient which has a steric hindrance substituent, and a disconjugation mold electronic transportation ingredient is given to below, it does not limit to this.

[0099]

[Formula 12]



[0100] [Formula 13]

$$2 - 6$$

#### 2-8

[0101] this electronic transportation layer — the above-mentioned compound — for example, vacuum evaporation technique, a spin coat method, the cast method, and LB — a film can be produced by the thin film-ized method law, the ink jet method, etc. are well-known, and it can form. The thickness as an electronic transportation layer and an electronic injection layer is usually chosen in 0.1nm - 5 micrometers, although there is especially no limit. This electronic transportation layer and an electronic injection layer may be 1 layer structures which consist of these electronic transportation ingredient kinds or two sorts or more.

[0102] Fluorescence maximum wave length may exceed 415nm, it is, and the electronic transportation ingredient which constitutes an electronic transportation layer when an electronic transportation layer does not adjoin a luminous layer is \*\*. In that case, there is especially no limit, and it can choose and use the thing of arbitration out of a well-known thing.

[0103] In this invention, when a luminous layer is an electron hole transportation mold luminous layer and an adjacent layer is an electronic transportation layer, the electron affinity of the electronic transportation ingredient which constitutes said electronic transportation layer is 2.5eV or more, and it is more desirable than fluorescence maximum wave Cho of the luminescent material from which fluorescence maximum wave Cho of said electronic transportation ingredient constitutes said electron hole transportation mold luminous layer that it is short wavelength. Moreover, it is desirable that the electron affinity of said electronic transportation ingredient is smaller than the electron affinity of said luminescent material in this case.

[0104] It is defined as an electron affinity with the energy which the electron in vacuum level falls and

stabilizes on the LUMO (minimum sky molecular orbital) level of a compound, and the energy value of the absorption end of an absorption spectrum is applied to the value of ionization potential. Ionization potential is as above-mentioned.

[0105] Moreover, fluorescence maximum wave Cho is synonymous with \*\*\*\*. Moreover, it means that stabilization energy is [ that an electron tends to go that an electron affinity is large into LUMO level from vacuum level ] large, namely, means that it is easy to be returned.

[0106] Next, the luminescent material which constitutes a luminous layer is explained. As for luminescent material, it is desirable that it is the organic compound or complex which emits fluorescence or phosphorescence, and it requires that fluorescence maximum wave length should be 415nm or less in this invention. As such \*\*\*\*\*\*\*\*\*, the thing of arbitration can be chosen and used out of the well-known thing used for the luminous layer of an organic EL device.

[0107] Moreover, most of the aforementioned electron hole transportation ingredients or electronic transportation ingredients can use it also as a luminescent material.

[0108] Polymeric materials like a polyvinyl carbazole or the poly fluorene are sufficient as luminescent material, and it may use the polymeric materials which introduced said luminescent material into the macromolecule chain further, or used said luminescent material as the principal chain of a macromolecule.

[0109] Moreover, a dopant (guest substance) may be used together to a luminous layer, and the thing of arbitration can be chosen and used for it out of the well-known thing used as a dopant of an EL element. [0110] while it has electron hole transportation ability and electronic transportation ability as a luminescent material -- and the long wave of luminescence -- merit-izing -- protecting -- in addition -- and the compound which is high Tg is desirable.

[0111] Such an organic compound is obtained by acting as the non-plane target of the pi electron flat surface according to effectiveness, such as steric hindrance, as a concrete example. Introducing the substituent of steric hindrance nature into the ortho position (it having seen from the nitrogen atom) of the aryl group of a thoria reel amine as an example is mentioned. Angle of torsion is reinforced by this. [0112] That is, without lowering Tg of a high Tg electron hole transportation compound and a high Tg electronic transportation compound by arranging effectively in an organic compound a substituent with steric hindrance, such as a peri position hydrogen atom of a methyl group, t-butyl, an isopropyl group, and a naphthyl group, although the fall of some electron hole transportation ability and electronic transportation ability is seen, the luminescent material which has short wavelength luminescence is obtained. However, a substituent is not limited above.

[0113] Moreover, what (in for example, the case of a triphenylamine meta position of a phenyl group) is also introduced to the extent that it un-conjugates, when introducing the radical conjugated to a ring is obtained

[0114] Thus, although the example of a compound of luminescent material and disconjugation mold luminescent material which has a steric hindrance substituent is given to below, it does not limit to this. [0115]

[Formula 14]

[0116] [Formula 15]

### [0117] [Formula 16]

[0118] [Formula 17]

[0119] this luminous layer — the above-mentioned compound — for example, vacuum evaporation technique, a spin coat method, the cast method, and LB — a film can be produced by the thin film-ized method law, the ink jet method, etc. are well-known, and it can form. The thickness as a luminous layer is usually chosen in 5nm - 5 micrometers, although there is especially no limit. This luminous layer may

- be 1 layer structure which consists of these luminescent-material kinds or two sorts or more, or may be a laminated structure which consists of two or more layers of the same presentation or a different-species presentation.
- [0120] In the organic EL device of this invention, that it is 100 degrees or more will prolong the life of an organic EL device, and each glass transition point (Tg) of all the ingredients that constitute an organic compound thin film has it. [desirable] Moreover, flexible nature will be given to the organic EL device itself. Tg is measured by the differential scanning calorimetry (DSC).
- [0121] Although especially limitation does not have the base preferably used for the organic EL device of this invention in classes, such as glass and plastics, and there will be especially no limit if it is the thing of transparence, as a substrate used preferably, glass, a quartz, and a light transmission nature resin film can be mentioned.
- [0122] It is the resin film which can give flexible nature especially to an organic EL device as a desirable base.
- [0123] As a resin film, the film which consists of polyethylene terephthalate (PET), polyethylenenaphthalate (PEN), polyether sulphone (PES), polyether imide, a polyether ether ketone, a polyphenylene sulfide, polyarylate, polyimide, a polycarbonate (PC), cellulose triacetate (TAC), cellulose acetate propionate (CAP), etc., for example is mentioned.
- [0124] The coat of an inorganic substance or the organic substance or the both hybrid coat may be formed in the front face of a resin film.
- [0125] As for the external ejection effectiveness in the room temperature of luminescence of the organic electroluminescent element of this invention, it is desirable that it is 1% or more, and it is 2% or more more preferably.
- [0126] In addition, it is electron number x100 passed to the number of photons / organic EL device which emitted light to the external ejection quantum efficiency (%) = organic EL device exterior. [0127] Furthermore, as for the organic EL device of this invention, it is desirable to have the color transducer changed into a color which absorbs luminescence from a luminous layer and is different from
- this luminescence. [0128] As a color transducer, there are hue amelioration filters, such as a color conversion filter containing a fluorescent substance or a color filter, etc.
- [0129] Although a color transducer may be prepared anywhere as long as it is the location which can absorb luminescence from a luminous layer, it is desirable to adjoin a base and to prepare.
- [0130] As a fluorescent substance contained in said color conversion filter, an organic fluorescent substance or an inorganic fluorescent substance is sufficient.
- [0131] Laser coloring matter etc. may be used as an example of an organic fluorescent substance. It is a desirable fluorochrome with a high fluorescence quantum yield.
- [0132] As a fluorescent substance, the inorganic fluorescent substance is more desirable. An inorganic fluorescent substance contains a rare earth complex system fluorescent substance.
- [0133] Y2O2S which are a crystal parent although the presentation of an inorganic fluorescent substance does not have especially a limit, The metallic oxide and ZnS which are represented by Zn2SiO4, calcium5(PO4)3Cl, etc., To the sulfide represented by SrS, CaS, etc., Ce, Pr, Nd, Pm, What combined the ion of metals, such as ion of rare earth metals, such as Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, and Yb, and Ag, aluminum, Mn, In, Cu, Sb, as an activator or a coactivator is desirable.
- [0134] When a crystal parent is explained in more detail, as a crystal parent, a metallic oxide is desirable. For example, (X)3aluminum 16O27, (X)4aluminum 14O25, (X)3aluminum2Si 2O10, (X)4Si 2O8, (X)2Si 2O6, (X)2P2O7, (X)2P2O5, (X)5(PO4)3Cl, (X) -- 2Si3O8-2(X) Cl2 -- [ -- here, X expresses alkaline earth metal. In addition, a single component or two or more kinds of mixed components are sufficient as the alkaline earth metal expressed with X, and the mixed ratio is arbitrary and good. ] \*\* -- the aluminum oxide permuted with alkaline earth metal [ like ], silicon oxide, a phosphoric acid, a halo phosphoric acid, etc. are mentioned as a typical crystal parent.
- [0135] What blended the metallic element of arbitration with sulfides, and those oxides and sulfides of the thing (sulfide) which changed a part of oxide of rare earth metals, such as a zincky oxide and a

sulfide, an yttrium, and GADORIUMU, a lanthanum, and oxygen of the oxide to the sulfur atom, and a rare earth metal as other desirable crystal parents is mentioned.

- [0136] The desirable examples of a crystal parent are enumerated below. Mg4GeO5.5F and Mg4 -- GeO6, ZnS, and Y2O2 -- S, Y3aluminum 5O12, Y2SiO10, Zn2SiO4, Y2O3, BaMgAl 10O17, and BaAl 12O19 (it Ba(s)), Sr, MgO-aAl 2O3, BO (Y, Gd)3, S (Zn, Cd), SrGa2 S4, SrS, GaS and SnO2, and calcium10(PO4) 6 (F --) Cl) -- 2 and aluminum (Mg (Ba, Sr), Mn) 10O17 (Sr --), calcium, Ba, and Mg10(PO4) 6 -- Cl2, PO (La, Ce)4, CeMgAl 11O19, GdMgB 5O10, Sr2P2O7, Sr4aluminum 14O25, Y2SO4, Gd2O2S, and Gd2 -- they are O3, YVO4, and Y(P, V) O4 grade.
- [0137] What is necessary is for what was replaced with the element of the same family in part to be sufficient as the above crystal parent and activator, or coactivator, and for there to be especially no limit in elementary composition, to absorb the light of a purple-blue field, and just to emit the light. [0138] A thing desirable as the activator of an inorganic fluorescent substance and a coactivator is the ion of metals, such as ion of the lanthanoids represented by La, Eu, Tb, Ce, Yb, Pr, etc., and Ag, Mn, Cu, In, aluminum, and 0.001-100-mol% of the amount of dopes is desirable to a parent, and is still more
- [0139] An activator and a coactivator are doped in the crystal by transposing some ion which constitutes a crystal parent to ion like the above-mentioned lanthanoids.
- [0140] If the actual presentation of a fluorescent substance crystal is indicated strictly, it will become the following empirical formulas, but since the size of the amount of an activator does not affect an essential fluorescence property in many cases, as long as there is no notice, suppose below that the numeric value of the following x or y is not indicated especially. For example, Sr4-xAl14O25:Eu 2+x writes it as Sr4aluminum14O25:Eu2+ in this invention.
- [0141] Although the empirical formula of a typical inorganic fluorescent substance (a crystal parent and inorganic fluorescent substance constituted with an activator) is indicated below, this invention is not limited to these. 3-x-yAl16O27:Eu 2+x, Mn2+y, (BazMg1-z) Sr4-xAl14O25:Eu 2+x, 1(Sr1-zBaz)-xAl2Si2O8:Eu 2+x, Ba2-xSiO4:Eu 2+x, Sr2-xSiO4:Eu 2+x, Mg2-xSiO4:Eu 2+x, 1(BaSr)-xSiO4:Eu 2+x, Y2-x-ySiO5:Ce 3+x, Tb3+y, Sr2-xP2O5:Eu 2+x, Sr2-xP2O7: -- Eu 2+x, 5(BayCazMg1-y-z)-x (PO4)3 Cl:Eu 2+x, Sr2-xSi3O8-2SrCl2:Eu 2+x [x, and y and z express the number of one or less arbitration, respectively.]

Although the inorganic fluorescent substance preferably used for below by this invention is shown, this invention is not limited to these compounds.

[Blue luminescence inorganic fluorescence compound]

desirable. [ 0.01-50 mol% of ]

- (BL-1) Sr2P2O7:Sn4+ (BL-2) Sr4aluminum14O25:Eu2+ (BL-3) BaMgAl10O17:Eu2+ (BL-4) SrGa2S4: Ce3+ (BL-5) CaGa2S4: Ce3+ (BL-6) aluminum10O17:Eu2+ (BL-7) (Ba, Sr) (Mg, Mn) 10 (PO4) 6Cl2:Eu2+ (BL-8) (Sr, calcium, Ba, Mg) BaAl2SiO8:Eu2+ (BL-9) Sr2P2O7:Eu2+ (BL-10) Sr5 (PO4) 3Cl:Eu2+ (BL-11) (Sr, calcium, Ba) 5(PO4) 3Cl:Eu2+ (BL-12) BaMg2aluminum16O27:Eu2+ (BL-13) (Ba, calcium) 5(PO4) 3Cl:Eu2+ (BL-14) Ba3MgSi2O8:Eu2+ (BL-15) Sr3MgSi2O8:Eu2+ [a green luminescence inorganic fluorescence compound]
- (GL-1) (BaMg)Al16O27:Eu2+,Mn2+(GL-2) Sr4Al14O25:Eu2+(GL-3) (SrBa)Al2Si2O8:Eu2+(GL-4) (BaMg)2SiO4:Eu2+(GL-5) Y2SiO5:Ce3+,Tb3+(GL-6) Sr2P2O7-Sr2B2O5:Eu2+(GL-7) (BaCaMg)5 (PO4)3Cl:Eu2+(GL-8) Sr2Si3O8-2SrCl2:Eu2+(G L-9 Zr2SiO4, MgAl11O19:Ce3+, Tb3+(GL-10) Ba2SiO4:Eu2+ (GL-11) Sr2SiO4:Eu2+ (GL-12) (BaSr) SiO4:Eu2+ [a red luminescence inorganic fluorescence compound]
- (RL-1) Y2O2S:Eu3+(RL-2) YAIO3:Eu3+(RL-3) Ca2Y2(SiO4)6:Eu3+(RL-4) LiY9(SiO4)6O2:Eu3+(RL-5) YVO4:Eu3+(RL-6) CaS:Eu3+(RL-7) Gd2O3:Eu3+(RL-8) Gd2O2S:Eu3+(RL-9) The Y(P,V) O4:Eu3+(RL-10) Mg4GeO5.5:Mn4+(RL-11) Mg4GeO6:Mn4+ above-mentioned inorganic fluorescent substance Surface treatment processing may be performed if needed and what is depended on the physical processing by addition of what is depended on chemical preparation, such as a silane coupling agent, as the approach, the particle of submicron order, etc., the thing further depended on those concomitant use are mentioned.
- [0142] As a silane coupling agent, what is indicated by the "NUC silicone silane coupling agent" catalog

of the Nippon Unicar, Inc. issue (August 2, 1997) can be used as it is. As the example, it is beta, for example. -(3, 4-epoxycyclohexyl)- Ethyl trialkoxysilane, Glycidyloxy ethyltriethoxysilane, a gamma-acryloyloxy-n-propyl tree n-propyloxy silane, A gamma-methacryloyloxy-n-propyl-n-propyloxy silane, A JI (gamma-acryloyloxy-n-propyl) G n-propyloxy silane, An acryloyloxy dimethoxy ethyl silane, N-beta(aminoethyl) gamma-aminopropyl trimethoxysilane, N-beta(aminoethyl) gamma-aminopropyl methyl dimethoxysilane, gamma-aminopropyl triethoxysilane, N-phenyl-gamma-aminopropyl trimethoxysilane, gamma-mercapto propyltrimethoxysilane, etc. are mentioned.

[0143] As a particle used by this invention, it is desirable that it is a non-subtlety particle, for example, particles, such as a silica, a titania, a zirconia, and a zinc oxide, are mentioned.

[0144] The inorganic fluorescent substance used for this invention does not pass through a mechanical crushing process from a viewpoint of luminescence reinforcement at the time of manufacture, that is, what is compounded by the build up method is desirable, and what is manufactured by the liquid phase process especially according to a sol-gel method etc. is desirable. Moreover, a presentation top has that desirable from which the inorganic oxide serves as a parent.

[0145] As for an inorganic fluorescent substance, being manufactured by the sol-gel method is desirable. Although written for example, to the Sumio Sakuhana work "application of a sol-gel method" (company issue of the 1997 AGUNE \*\* style) as the manufacture approach by the sol-gel method in detail With the "sol-gel method" as used in the field of [ fundamentally, leaves a solution, means how to compound an ingredient at low temperature rather than scorification through solation of a solution, and gelation, and I this invention It can point out performing the reaction in a liquid phase process at at least I process of fluorescent substance manufacture, and can distinguish from the synthesis method performed at the melting reaction applied to the usual inorganic fluorescent substance composition. The sol-gel method of this invention The element (metal) generally used for a parent, an activator, or a coactivator For example, metal alkoxide metallurgy group complexes, such as a tetramethoxy silane (Si4 (OCH3)) and europium =2 and 4= pentane JIONETO (Eu 3+(CH3 COCH=C CH3 (O-)) 3), Or the double alkoxide which adds and makes a metal simple substance in those organic solvent solutions (for example, Mg [aluminum(OBu)3] 2 grade which adds and makes metal magnesium in the 2-butanol solution of aluminum (OBu)3), The manufacture approach by carrying out initial-complement mixing as a metal halogenide, the metal salt of an organic acid, and a metal simple substance, and carrying out a polycondensation thermally in the state of the liquid phase or chemically is meant, and baking, reduction processing, etc. may be performed if needed.

[0146] In addition, it is defined [ others / "the metals (Metals)" generally defined by the periodic table etc. ] as the "metal" of said metal alkoxide, a metal halogenide, a metal salt, or a metal as a thing containing all the elements of "transition metals (Transition Metals)", all the elements of a "lanthanoids", all "actinoid" elements and the boron defined as "a nonmetal (Non Metals)", and silicon (silicon).

[0147] Moreover, when manufacturing especially with a sol-gel method, after carrying out patterning of the liquid containing the precursive solution or primary particle of a fluorescent substance to a transparence substrate by print processes, the ink jet method, etc., crystallization processing of baking, reduction processing, etc. or high brightness-ized processing may be performed.

[0148] The compound which either an aromatic series system or a non-aromatic system is OK as, and is preferably expressed with the following general formula (1) as an organic ligand which what has Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, etc. as a rare earth metal is mentioned as a rare earth complex system fluorescent substance, and forms a complex is desirable.

[0149] general formula (1) Xa -- Lx, Ly, and Lz express the atom which has two or more joint hands independently, respectively among a -(Lx)-(Ly)n-(Lz)-Ya[type, n expresses 0 or 1, Xa expresses the substituent which has the atom which can be configurated at least in contiguity of Lx, and Ya expresses the substituent which has the atom which can be configurated at least in contiguity of Lz. Furthermore the part of the arbitration of Xa and Lx are condensed mutually, a ring may be formed, the part of the arbitration of Ya and Lz are condensed mutually, a ring may be formed, Lx and Lz are condensed mutually, a ring may be formed, and an aromatic hydrocarbon ring or at least one aromatic heterocycle

exists in intramolecular further. Xa-(Lx)-(Ly)n-(Lz)-Ya However, beta-diketone derivative and a beta-keto ester derivative, What transposed the beta-keto amide derivative or the oxygen atom of said ketone to sulfur atom or -N(R201)-, When it expresses the crown ether which transposed the oxygen atom of crown ether, aza-crown ether, thia crown ether, or crown ether to the number sulfur atom of arbitration, or -N(R201)-, there may not be an aromatic hydrocarbon ring or an aromatic heterocycle. - In N(R201)-, R201 expresses the aryl group which is not permuted [ the alkyl group which is not permuted / a hydrogen atom, a permutation, or /, a permutation, or ].] In a general formula (1), the atoms which are expressed with Xa and Ya and which can be configurated are specifically an oxygen atom, a nitrogen atom, a selenium atom, and a tellurium atom, and it is especially desirable that they are an oxygen atom, a nitrogen atom, and a sulfur atom.

[0150] In a general formula (1), as an atom with two or more joint hands of being expressed with Lx, Ly, and Lz, although there is especially no limit, and a carbon atom, an oxygen atom, a nitrogen atom, a silicon atom, a titanium atom, etc. are mentioned typically, that of this better potato is a carbon atom. [0151] Although the example of a rare earth complex system fluorescent substance expressed with a general formula (1) below is shown, this invention is not limited to these. [0152]

[Formula 18]

## RE-2

## RE-3

# RE-4

## RE-5

[0153] [Formula 19]

## RE-6

## RE-7

RE-8

RE-9

RE-10

RE-11

RE-12

[0154] [Formula 20] RE-13

RE-14

RE-15

2

RE-16

RE-18

RE-22

RE-19

RE-23

RE-20

RE-24

[0155] [Formula 21]

RE-26

RE-27

RE-28

[0156] [Formula 22]

[0157] [Formula 23]

## RF-13

RF-11

RF-12

[0158] [Formula 24]

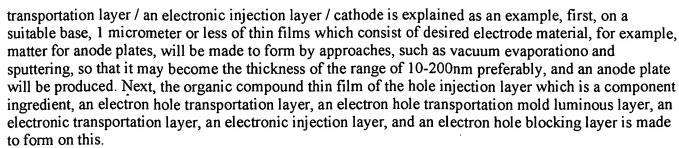
RF-17

RF-21

$$(H_2O)_{\frac{1}{3}} - Euv_{0O} = CF_3$$

$$($$

[0159] Next, the suitable example which produces the organic EL device of this invention is explained. If the method of producing an EL element which consists of an anode plate / hole injection layer / electron hole transportation layer / an electron hole transportation mold luminous layer / electronic



[0160] As the approach of thin-film-izing of this organic compound thin film, although there are a spin coat method, the cast method, the ink jet method, vacuum deposition, etc. like the above, especially the point of the homogeneous film being easy to be obtained and being hard to generate a pinhole to a vacuum deposition method or a spin coat method is desirable. The producing-film method different furthermore for every layer may be applied. When adopting vacuum deposition as film production, although it changes with classes of compound to be used etc., as for the vacuum evaporation condition, it is desirable to choose suitably whenever [boat stoving temperature] generally in 50-450 degrees C, a 10-6 to ten to 2 Pa degree of vacuum, the evaporation rate of 0.01-50nm/second, the substrate temperature of -50-300 degrees C, and the range of 0.1nm - 5 micrometers of thickness. [0161] A desired EL element is obtained by making the thin film which consists of matter for cathode on it form by approaches, such as vacuum evaporation and sputtering, after formation of these layers, so that 1 micrometer or less may become the thickness of the range of 50-200nm preferably, and preparing cathode. Although the producing-film method which takes out on the way and is different although it is desirable for it to be consistent by one vacuum suction, and to produce from a hole injection layer to cathode as for production of this organic EL device may be given, in that case, consideration of working under a desiccation inert gas ambient atmosphere is needed. [0162] Moreover, it is also possible to make production sequence reverse and to produce it in order of cathode, an electronic injection layer, an electronic transportation layer, an electron hole transportation mold luminous layer, an electron hole transportation layer, a hole injection layer, and an anode plate. Thus, luminescence can be observed, if + is impressed for an anode plate and it impresses about electrical-potential-difference 2-40V for cathode as a polarity of -, in impressing direct current voltage to the obtained organic EL device. Moreover, even if it impresses an electrical potential difference with a reverse polarity, luminescence is not produced at all, without a current flowing. Furthermore, in impressing alternating voltage, only when an anode plate changes + and cathode changes into the condition of -, it emits light. In addition, the wave of the alternating current to impress is arbitrary and good.

[0163] The organic EL device of this invention which gave [ above-mentioned ] explanation can be used as the various luminescence light sources, a lighting system, and a display device. In a display device, a full color display is attained by using three sorts of organic EL devices whose color transducers are blue transducer, green transducer, and red transducers.

[0164] As a display device, the display of television, a personal computer, mobile computing devices, an AV equipment, a teletext display, an information display automatic in the car, etc. is mentioned. A simple matrix (passive matrix) method, an active-matrix method, or whichever is sufficient as the drive method in the case of using it as a display which reproduces especially a static image and a dynamic image, and using it as a display for animation playback.

[0165] Although the back light for domestic lighting, lighting in the car, a clock, or liquid crystal, a signboard advertisement, a signal, etc. are mentioned as a lighting system, it does not limit to this. [0166] As a lighting system, luminescence emitted from the luminous layer of an organic EL device may be used as it is, the fluorescent substance which has absorption is combined with the color field of this luminescence, color conversion is carried out, and it is good also as the white light. The white light is white which a CIE chromaticity diagram defines.

[0167] Moreover, you may use as a laser oscillation organic EL device by giving resonator structure to the organic EL device of this invention.

[0168] Although the light source of an optical storage, the light source of electrophotography, the light source of an optical-communication processing machine, the light source of a photosensor, etc. are mentioned as the purpose of using the organic EL device which carries out laser oscillation of such short wave Nagamitsu, it does not limit to this.

[0169]

[Example] Although the example was given and this invention was hereafter explained to the detail, on the glass substrate (example 1) which is not limited to this, the mode of this invention vapor-deposited ITO by 200nm of thickness, and formed the anode plate (sheet resistance 300hm/\*\*). On this anode plate, the compound 1-21 was vapor-deposited to 33nm of thickness with the vacuum deposition method, and the electron hole transportation layer was formed. Subsequently, the compound 3-1 was vapor-deposited to 33nm of thickness, and the electron hole transportation mold luminous layer was formed. Furthermore, on it, BC was vapor-deposited 33nm of thickness, and it considered as the electronic transportation layer.

[0170] Vapor codeposition of Mg and Ag was carried out to the last, the MgAg (10:1) cathode of 200nm of thickness was formed, and organic EL device No.1 was produced.
[0171]

[Formula 25]

BC

[0172] The physical properties of a compound 1-21, a compound 3-1, and BC are shown below. [0173]

[Table 1]

	化合物	膜状態での蛍光 極大波長(nm)	イオン化 ポテンシャル(eV)	電子親和力 (eV)	Tg(℃)
正孔輸送層	1-21	393	5.4	2.2	110
正孔輸送型発光層	3-1	398	5.7	2.5	133
電子輸送層	BC	398	6.1	2.8	_

[0174] The luminescence property of the produced organic EL device is shown. They were the luminescence maximum wave length of 405nm of electroluminescence, the maximum brightness of 500 cds, and maximum radiant energy 16W/steradian/m2.

[0175] 1.0%, in the CIE chromaticity diagram, external ejection quantum efficiency was (0.175, 0.06), and was purple-blue fields. Moreover, driver voltages were 4-19V.

[0176] In addition, it is electron number x100 passed to the number of photons / organic EL device which emitted light to the external ejection quantum efficiency (%) = organic EL device exterior. [0177] In addition, the measuring method of the amount effectiveness of external ejection asked for the number of photons which asked for the number of photons of 380-780nm from the energy of the photon

of each wavelength, and emitted light from the luminescence side based on the lumber cyanogen assumption further in the emission spectrum measured by spectral radiance meter CS-1000. Moreover, the electron number was calculated from the amount of currents.

[0178] (Example 2) On the glass substrate, ITO was vapor-deposited by 200nm of thickness, and the anode plate (sheet resistance 30ohm/\*\*) was formed. On this anode plate, the compound 1-1 was vapor-deposited to 33nm of thickness with the vacuum deposition method, and the electron hole transportation layer was formed. Subsequently, the compound 3-1 was vapor-deposited to 33nm of thickness, and the electron hole transportation mold luminous layer was formed. Furthermore, on it, Compound BC was vapor-deposited 33nm of thickness, and it considered as the electronic transportation layer.

[0179] Vapor codeposition of Mg and Ag was carried out to the last, the MgAg (10:1) cathode of 200nm of thickness was formed, and organic EL device No.2 were produced.

[0180] The physical properties of a compound are shown below. [0181]

[Table 2]

	化合物	膜状態での蛍光 極大波長(nm)	イオン化 ポテンシャル(eV)	電子親和力 (eV)	Tg(℃)
正孔輪送層	1-1	395	5.6	2.3	73
正孔輸送型発光層	3-1	398	5.7	2.5	133
電子輸送層	BC	398	6.1	2.8	

[0182] The luminescence property of the produced organic EL device is shown. They were the luminescence maximum wave length of 405nm of electroluminescence, the maximum brightness of 300 cds, and maximum radiant energy 13W/steradian/m2.

[0183] 1.2%, in the CIE chromaticity diagram, external ejection quantum efficiency was (0.175, 0.06), and was purple-blue fields.

[0184] (Example 3) On the glass substrate, ITO was vapor-deposited by 200nm of thickness, and the anode plate (sheet resistance 300hm/\*\*) was formed. On this anode plate, 20nm of m-MTDATA was vapor-deposited with the vacuum deposition method, and the hole injection layer was formed. Subsequently, the compound 1-21 was vapor-deposited to 20nm of thickness with the vacuum deposition method, and the electron hole transportation layer was formed. Furthermore, the compound 3-1 was vapor-deposited to 20nm of thickness, and the electron hole transportation mold luminous layer was formed. BC was vapor-deposited 20nm of thickness on it, and it considered as the electronic transportation layer. And on it, 20nm laminating of the Alq was carried out, and it considered as the electronic transportation layer. Furthermore, LiF0.5nm and aluminum110nm were vapor-deposited, cathode was formed, and organic EL device No.3 were produced.

[0185] The physical properties of a compound are shown below.

[0186]

[Table 3]

	化合物	膜状態での蛍光 極大波長(nm)	イオン化 ポテンシャル(eV)	電子親和力 (eV)	Tg(℃)
正孔注入層	m-MTDATA	429	5.1	2.0	75
正孔輸送層	1-21	395	5.6	2.3	110
正孔輸送型発光層	3-1	398	5.7	2.5	133
電子輸送層	BC	397	6.1	2.8	_
電子注入層	Alq	520	5.7	3.0	167

#### [0187] [Formula 26] m-MTDATA

[0188] The luminescence property of the produced organic EL device is shown. They were the luminescence maximum wave length of 405nm, the maximum brightness of 700 cds, and maximum radiant energy 25W/steradian/m2. 2.1%, in the CIE chromaticity diagram, external ejection quantum efficiency was (0.175, 0.06), and was purple-blue fields.

[0189] (Example 4) The organic EL device No.4 [ same ] as an example 1 were produced except having changed the electronic injection layer into the compound 2-3.

[0190] The physical properties of a compound are shown below. [0191]

[Table 4]

	化合物	膜状態での蛍光 極大波長(nm)	イオン化 ポテンシャル(eV)	電子親和力 (eV)	Tg(℃)	
正孔輸送層	1-21	393	5.4	2.2	110	
正孔輸送型発光層	3-1	398	5.7	2.5	133	
電子輸送層	2-3	397	6.1	2.8	130	

[0192] They were the luminescence maximum wave length of 405nm, the maximum brightness of 600 cds, and maximum radiant energy 22W/steradian/m2.

[0193] 1.1%, in the CIE chromaticity diagram, external ejection quantum efficiency was (0.175, 0.06), and was purple-blue fields.

[0194] Driver voltages are 4-27V, and it came to drive them to stability as compared with the example 1 by making Tg of all compounds into 100 degrees C or more.

[0195] (Example 5) On the glass substrate, ITO was vapor-deposited by 200nm of thickness, and the anode plate (sheet resistance 300hm/\*\*) was formed. On this anode plate, the compound 1-21 was vapor-deposited to 33nm of thickness with the vacuum deposition method, and the electron hole transportation layer was formed. Subsequently, the compound 3-11 was vapor-deposited to 33nm of thickness, and the electronic transportation mold luminous layer was formed. Furthermore, on it, BC was vapor-deposited 33nm of thickness, and it considered as the electronic transportation layer.

[0196] Vapor codeposition of Mg and Ag was carried out to the last, the MgAg (10:1) cathode of 200nm

[0196] Vapor codeposition of Mg and Ag was carried out to the last, the MgAg (10:1) cathode of 200nm of thickness was formed, and organic EL device No.5 were produced.

[0197] The physical properties of a compound are shown below.

[0198] [Table 5]

	化合物	膜状態での蛍光 極大波長(nm)	イオン化 ポテンシャル(eV)	電子親和力 (eV)	Tg(℃)
正孔輸送層	1-21	393	5.4	2.2	110
電子輸送型発光層	3-11	395	5.8	2.6	130
電子輸送層	BC	398	6.1	2.8	

[0199] The luminescence property of the produced organic EL device is shown. They were the luminescence maximum wave length of 402nm of electroluminescence, the maximum brightness of 300 cds, and maximum radiant energy 13W/steradian/m2. 1.1%, in the CIE chromaticity diagram, external ejection quantum efficiency was (0.175, 0.06), and was purple-blue fields.

[0200] (Example 1 of a comparison) Organic EL device No.6 [ same ] were produced except having changed the electronic transportation layer BC of organic EL device No.1 of an example 1 into Alq. Then, Alq became an electronic transportation mold luminous layer. [0201]

Table 61

	化合物	膜状態での蛍光 極大波長(nm)	イオン化 ポテンシャル(eV)	電子親和力 (eV)	Tg(℃)
正孔注入層	1-21	393	5.4	2.2	110
正孔輸送層	3-1	398	5.7	2.5	133
電子輸送型発光層	Alq	520	5.7	3.0	167

[0202] The luminescence property of the produced organic EL device is shown. They were the luminescence maximum wave length of 518nm of electroluminescence, the maximum brightness of

3300 cds, and maximum radiant energy 8.8W/steradian/m2. Moreover, in the CIE chromaticity diagram, it was (0.30, 0.50) and was an yellowish green field.

[0203] (Example 2 of a comparison) Organic EL device No.7 were produced similarly except having changed into m-MTDATA the compound 1-21 which is the electron hole transportation layer of organic EL device No.5 of an example 5. Then, m-MTDATA became an electron hole transportation mold luminous layer.

[0204] The physical properties of a compound are shown below. [0205]

[Table 7]

14010 / 1							
	化合物	膜状態での蛍光 極大波長(nm)	イオン化 ポテンシャル(eV)	電子親和力 (eV)	Tg(℃)		
正孔輸送型発光層	m-MTDATA	429	5.1	2.0	75		
電子輸送層	3-11	395	5.8	2.6	130		
電子注入層	pIA	520	5.7	3.0	167		

[0206] The luminescence property of the produced organic EL device is shown. In the luminescence maximum wave length of 430nm of electroluminescence, the maximum brightness of 500 cds, maximum radiant energy 4.4W/steradian/m2, and a CIE chromaticity diagram, it was (0.163, 0.125) and was a blue field.

[0207] (Example 6) the ITO top on a substrate -- as a hole injection layer -- a compound 1-21 -- as 30nm and an electron hole transportation mold luminous layer -- a compound 3-1 -- as 30nm and an electronic transportation layer -- a compound 2-7 -- as 20nm and an electronic injection layer -- Alq -- as 20nm and cathode -- LiF0.5 -- organic EL device No.8 which vapor-deposited 110nm for nm and aluminum with the vacuum deposition method were produced.

[0208] [Table 8]

	化合物	膜状態での蛍光 極大波長(nm)	イオン化 ポテンシャル(eV)	電子親和力 (eV)	Tg(℃)
正孔注入層	1-21	393	5.4	2.2	110
正孔輸送型発光層	31	398	5.7	2.5	133
電子輸送層	2-7	395	6.2	2.9	105
電子注入層	ρlΑ	520	5.7	3.0	167

[0209] The luminescence maximum wave length of electroluminescence was (0.175, 0.06) in 405nm, the external ejection quantum efficiency of 1.1%, the maximum brightness of 450 cds, maximum radiant energy 16W/steradian/m2, and a CIE chromaticity diagram, and the luminescence property of the produced organic EL device was a purple-blue color.

[0210] (Example 7) Life evaluation was performed about organic EL device No.3 produced in the above-mentioned examples 3, 4, and 6, and 4 and 8. In addition, it reaches organic EL device No.4, and the glass transition point of all the ingredients with which 8 constitutes an organic compound thin film is 100 degrees or more, and, on the other hand, contains the ingredient with which, as for a part of organic EL device No.3, a glass transition point cuts 100 degrees C.

[0211] The measuring method of a life put in the organic EL device into the desiccator, and decompressed it to 0.1Pa or less. In the condition, the constant current drive was carried out in 1.0A. The magnitude of an organic EL device is 2mx2mm.

[0212] The brightness at this time was measured and the place which brightness reduced by half was made into the life. When the life of organic EL device No.3 is set to 1, it reaches organic EL device No.4 and the relative life of 8 is shown in the following table 9.

[0213]

[Table 9]

有機 EL 素子 No.	相対寿命
No. 3	1
No. 4	20
No. 8	50

[0214] It turns out that it life[ super-]-ized by leaps and bounds by making into 100 degrees C or more the glass transition point Tg of all the ingredients that constitute the organic compound thin film of an organic EL device.

[0215] (Example 8) Ethanol 15g and gamma-glycidoxy propyltriethoxysilane 0.22g were added to Aerosil of 5nm of mean diameters 0.16g, and it stirred under the open system room temperature for 1 hour, this mixture and 20g (GL-10) of inorganic fluorescent substances -- a mortar -- moving -- good -- after grinding \*\*\*\*\* and 70-degree C oven -- oven (2 hours and 120 more degrees C) -- 2 hours -- heating -- surface treatment -- having carried out (GL-10) -- it obtained.

[0216] Moreover, surface treatment of RL-10 and BL-3 was performed similarly. After adding and stirring butyral 30g dissolved in 10g (RL-10) of red luminescence inorganic fluorescent substances of this invention which gave the above-mentioned surface treatment with the mixed solution (300g) of toluene / ethanol =1/1, it applied on glass by 200 micrometers of Wet thickness. Stoving of the obtained applied glass was carried out in 100-degree C oven for 4 hours. Furthermore, the color conversion filter (F-1) of this invention was produced by sticking a red color filter.

[0217] Moreover, the color conversion filter (F-3) was produced by painting a green luminescence inorganic fluorescent substance (GL-10) by the same approach as this, painting a color conversion filter (F-2) and a blue luminescence inorganic fluorescent substance (BL-3) by stretching a green color filter, and stretching a blue color filter.

[0218] organic EL device No.1- of this invention which produced this F-1 in the above-mentioned example -- 5 or 8 -- it was alike, respectively, it set and put on the field which has not vapor-deposited the organic compound thin film (F-EL1). the same -- the color conversion filter of F-2 and F-3 sheets -- organic EL device No.1-5 or 8 -- it was alike, respectively, it set and put on the field which has not vapor-deposited the organic compound thin film (F-EL2, F-EL3).

[0219] When the current was passed to F-EL1, color conversion was carried out with the color conversion filter, and purple-blue luminescence turned into red light.

[0220] When the current was passed to F-EL2, color conversion was carried out with the color conversion filter, and purple-blue luminescence turned into green light.

[0221] When the current was passed to F-EL3, color conversion was carried out with the color conversion filter, and purple-blue luminescence turned into blue glow.

[0222] (Example 9) The magnetron sputtering system (SLC[ by Shimadzu Corp. ]-15 smooth S form) equipped with 200x700mm two targets of 2 was used, and the transparent conductive film was produced. It ITO(s) as a base — as a polyarylate bright film with a thickness of 100 micrometers and the target for barrier nature thin films — as SiO1.5 and the target for transparent conductive thin films — a tin-oxide ratio — 10% — Only with an argon a barrier nature thin film as sputtering gas The total gas pressure 1.4mTorr, Quantity-of-gas-flow 100sccm (sccm:standard cc/min (1x10-6m3/min)), It is what added oxygen to the argon 1% in the transparent conductive thin film. The total gas pressure 5mTorr, The barrier thin film formed membranes by [ as RF1000W (1.11 W/cm2) and a transparent conductive thin film serving as DC 0.5A and 300V (0.17 W/cm2) ] as quantity-of-gas-flow 50sccm and power conditions. The barrier nature thin film was processed for 7.5 minutes, and 40nm in thickness and a transparent conductive thin film were processed for 30 minutes, and obtained 100nm in thickness, and the transparence resin film of 50ohms of sheet resistance, and \*\*.

[0223] The rest produced the organic EL device like the example 8 using this plastics base.

[0224] As for these organic EL devices, it is possible to make it curve, and they can be applied to a flexible device.

[0225] (Example 10) An example of the display of this invention which consists of organic EL devices

of this invention produced in the above-mentioned example 9 hereafter is explained below based on a drawing. Although the organic EL device produced in the example 9 emits what uses the resin film as a base, and has a color transducer, and emits red light, the thing which emits green light, and blue glow, the number of them is three.

[0226] Display image information by luminescence of an organic EL device, for example, <u>drawing 1</u> is the mimetic diagram of the display of a cellular phone etc.

[0227] A display 1 consists of a control section B which performs the image scan of Display A based on the display A which has two or more pixels 3, and image information.

[0228] a control section B is electrically connected with Display A -- having -- two or more pixels 3 -- it is alike, respectively, the pixel 3 for every scanning line carries out sequential luminescence of a scan signal and the image data signal according to an image data signal based on the image information from the outside with delivery and a scan signal, an image scan is performed, and image information is displayed on Display A.

[0229] <u>Drawing 2</u> is the mimetic diagram of Display A. Display A has the wiring section containing two or more scanning lines 5 and data lines 6, and two or more pixel 3 grades on a base. The main members of Display A are explained to below.

[0230] In drawing, the light in which the pixel 3 emitted light shows the case where it is taken out in the direction of a white arrow head (down).

[0231] The scanning line 5 and two or more data lines 6 of the wiring section consisted of an electrical conducting material, respectively, and the scanning line 5 and the data line 6 intersected perpendicularly in the shape of a grid, and it has connected with a pixel 3 in the location which intersects perpendicularly (detail un-illustrating).

[0232] A pixel 3 will emit light according to reception and the received image data in an image data signal from the data line 6, if a scan signal is impressed from the scanning line 5. The full color display of the color of luminescence is attained by juxtaposing a red pixel, a green pixel, and a blue pixel on the same base suitably.

[0233] Next, the luminescence process of a pixel 3 is explained. <u>Drawing 3</u> is the mimetic diagram of a pixel 3.

[0234] The pixel 3 is equipped with the organic EL device 10, the switching transistor 11, the drive transistor 12, and the capacitor 13 grade.

[0235] In drawing, an image data signal is impressed to the drain of a switching transistor 11 through the data line 6 from a control section B. And if a scan signal is impressed to the gate of a switching transistor 11 through the scanning line 5 from a control section B, the drive of a switching transistor 11 will turn on and the image data signal impressed to the drain will be transmitted to the gate of a capacitor 13 and the drive transistor 12.

[0236] While a capacitor 13 is charged by transfer of an image data signal according to the potential of an image data signal, the drive of the drive transistor 12 turns on. A drain is connected to power-source Rhine 7, and, as for the drive transistor 12, a current is supplied to an organic EL device 10 from power-source Rhine 7 according to the potential of the image data signal with which it connects with the electrode of an organic EL device 10, and the source was impressed to the gate.

[0237] If a scan signal moves to the following scanning line 5 by sequential scanning of a control section B, the drive of a switching transistor 11 turns off. However, since a capacitor 13 holds the potential of the charged image data signal, an ON state is maintained, and even if the drive of a switching transistor 11 turns off, luminescence of an organic EL device 10 continues the drive of the drive transistor 12 until impression of the following scan signal is performed. When a scan signal is impressed next by sequential scanning, the drive transistor 12 drives according to the potential of the following image data signal which synchronized with the scan signal, and an organic EL device 10 emits light.

[0238] namely, luminescence of an organic EL device 10 -- two or more pixels 3 -- the switching transistor 11 and the drive transistor 12 which are an active component to each organic EL device 10 -- preparing -- two or more pixels 3 -- light is emitted in each organic EL device 10. Such a luminescence

approach is called the active matrix.

[0239] Here, luminescence of two or more gradation depended on the image data signal with two or more gradation potentials of a multiple value is sufficient as luminescence of an organic EL device 10, and ON of the predetermined amount of luminescence by the binary image data signal and OFF are convenient for it.

[0240] Moreover, maintenance of the potential of a capacitor 13 may be continued and held to impression of the following scan signal, and it may be made to discharge, just before the following scan signal is impressed.

[0241] In this invention, only when not only an active matrix but the scan signal mentioned above is scanned, the luminescence drive of a passive matrix method which makes an organic EL device emit light according to a data signal is sufficient.

[0242] <u>Drawing 4</u> is the mimetic diagram of the display A by the passive matrix method. In drawing, two or more scanning lines 5 and two or more image data lines 6 counter on both sides of a pixel 3, and are formed in the shape of a grid.

[0243] When the scan signal of the scanning line 5 is impressed by sequential scanning, the pixel 3 linked to the impressed scanning line 5 emits light according to an image data signal.

[0244] By the passive matrix method, there is no active component in a pixel 3, and reduction of a manufacturing cost can be measured.

[0245] (Example 11) The inorganic fluorescent substance of an example 8 was mixed at a rate of BL-10:GL-10:RL-10=10:90:45. After adding and stirring butyral 30g dissolved in 10g of this mixed fluorescent substance with the mixed solution (300g) of toluene / ethanol =1/1, it applied on glass by 200 micrometers of Wet thickness. Stoving of the obtained applied glass was carried out in 100-degree C oven for 4 hours, and the color conversion filter (F-4) of this invention was produced.

[0246] These F-4 was put on the field which has not vapor-deposited the organic layer of organic EL device No.1 (F-EL4).

[0247] When the current was passed to F-EL4, color conversion was carried out with the color conversion filter, and purple-blue luminescence turned into the white light.

[0248] When the lighting system of the white light which consists of above-mentioned F-EL4 was produced, \*\*\*\*\*\* which makes a desired color emit light became possible by using as a color transducer what the inorganic fluorescent substance mixed in this way. Like the conventional organic EL device, this is easy rather than it adjusts the lamination of a device.

[0249]

[Effect of the Invention] Light was shape[ of a field ]-emitted by power saving, and production of a flexible device is possible and luminescence maximum wave length with high luminous efficiency was able to offer the luminescence light source and the lighting system using an organic EL device 415nm or less and this organic EL device, and the display device.

[Translation done.]

#### (19)日本国特許庁(JP)

## (12) 公開特許公報(A)

(11)特許出顧公開番号 特開2002-324676 (P2002-324676A)

(43)公開日 平成14年11月8日(2002.11.8)

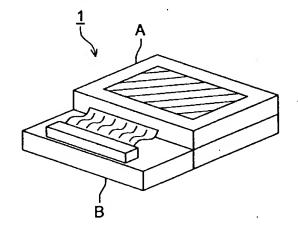
機別記号 /14 /06 602 /30 365	FI H05B 3 C09K 1	3/14	ž B	-73-1*(参考)
<b>6 0 2</b>		3/14	TQ.	
	C09K 1		D	3 K O O 7
/20 265		1/06	602	5 C 0 9 4
30 3 5 5	G09F	9/30	365Z	
/02	H05B 3	3/02		
/12	3	3/12	В	
審査請求	未謝求 請求項	画の数22 OL	(全 42 頁)	最終頁に続く
特額2001-129284(P2001-129284)	(71)出顧人	000001270		
		コニカ株式会	社	
平成13年4月26日(2001.4.26)		東京都新宿区	西新宿1丁目	26番2号
	(72)発明者	硯里 善幸		
		東京都日野市	iさくら町1番	地コニカ株式会
		社内		
	(72)発明者	源田 和男		
		東京都日野市	さくら町1番	地コニカ株式会
		社内		
	(72)発明者	押山 智寬		
·		東京都日野市	でくら町1番	地コニカ株式会
		社内		
				最終質に続く
		(72)発明者	社内 (72)発明者 源田 和男 東京都日野市 社内 (72)発明者 押山 智寛	社内 (72)発明者 瀬田 和男 東京都日野市さくら町1番 社内 (72)発明者 押山 智寛 東京都日野市さくら町1番

#### (54)【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子、発光光源、照明装置、表示デバイスおよび発光方法

#### (57)【要約】

【課題】 省電力で面状発光し、フレキシブルデバイスの作製が可能であり、発光効率が高い発光極大波長が415nm以下の有機EL素子、該有機EL素子を用いた発光光源、照明装置、表示デバイス及び発光方法を提供する。

【解決手段】 基体上に、一対の電極および該一対の電極に挟持される有機化合物薄膜を有する有機EL素子において、前記有機化合物薄膜は発光層と、前記発光層と隣接する隣接層とを有し、前記発光層を構成する発光材料および前記隣接層を構成する隣接層材料それぞれの蛍光極大波長が415nm以下であることを特徴とする有機EL素子、該有機EL素子を用いた発光光源、照明装置、表示デバイスおよび発光方法。



#### 【特許請求の範囲】

【請求項1】 基体上に、一対の電極および該一対の電極に挟持される有機化合物薄膜を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記有機化合物薄膜は発光層と、

前記発光層と隣接する隣接層とを有し、

前記発光層を構成する発光材料および前記隣接層を構成 する隣接層材料それぞれの蛍光極大波長が415 n m以 下であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセン ス素子。

【請求項2】 前記有機エレクトロルミネッセンス素子の電界発光の極大発光波長が415nm以下であることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項3】 前記発光層が電子輸送型発光層であり、 且つ、前記隣接層が正孔輸送層であることを特徴とする 請求項1または2に記載の有機エレクトロルミネッセン ス素子。

【請求項4】 前記正孔輸送層が接する側とは反対側の前記電子輸送型発光層の隣接層として電子輸送層を有し、前記電子輸送層を構成する電子輸送材料の蛍光極大波長が415nm以下であることを特徴とする請求項3に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項5】 前記正孔輸送層を構成する正孔輸送材料のイオン化ポテンシャルが5.7eV以下であり、前記正孔輸送材料の蛍光極大波長が前記電子輸送型発光層を構成する発光材料の蛍光極大波長よりも短波長であることを特徴とする請求項3または4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項6】 前記正孔輸送材料のイオン化ポテンシャ 30 ルが、前記発光材料のイオン化ポテンシャルよりも小さいことを特徴とする請求項5に記載の有機エレクトロルミネッセンス案子。

【請求項7】 前記発光層が正孔輸送型発光層であり、 且つ、前記隣接層が電子輸送層であることを特徴とする 請求項1または2に記載の有機エレクトロルミネッセン ス素子。

【請求項8】 前記正孔輸送層が接する側とは反対側の 前記電子輸送型発光層の隣接層として電子輸送層を有 し、前記正孔輸送層を構成する正孔輸送材料の蛍光極大 40 波長が415nm以下であることを特徴とする請求項7 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項9】 前記電子輸送層を構成する電子輸送材料の電子親和力が2.5 e V以上であり、前記電子輸送材料の蛍光極大波長が前記正孔輸送型発光層を構成する発光材料の蛍光極大波長よりも短波長であることを特徴とする請求項7または8に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項10】 前記電子輸送材料の電子親和力が、前 記発光材料の電子親和力よりも大きいことを特徴とする 50

請求項9に記載の有機エレクトロルミネッセンス案子。 【請求項11】 前記有機化合物薄膜を構成する全材料 のそれぞれのガラス転移点が100度以上であることを

のそれぞれのカラス転移点が100度以上であることを 特徴とする請求項1~10のいずれか1項に記載の有機 エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項12】 前記基体が樹脂フィルムであることを 特徴とする請求項1~11のいずれか1項に記載の有機 エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項13】 前記有機エレクトロルミネッセンス素 10 子の発光の室温における外部取り出し効率が2%以上で あることを特徴とする請求項1~12のいずれか1項に 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項14】 前記発光層からの発光を吸収し、該発光とは異なる色に変換する色変換部とを有することを特徴とする請求項1~13のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項15】 前記発光層からの発光が青紫領域の色であることを特徴とする請求項14に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

20 【請求項16】 前記色変換部が、無機蛍光体を含有することを特徴とする請求項14または15に記載の有機 エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項17】 請求項1~16のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子から構成される発光光源。

【請求項18】 請求項1~16のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子から構成される照明装置。

【請求項19】 前記色変換部が前記発光層からの発光 シ吸収し青色に変換する青色変換部である請求項14に 記載の第1の有機エレクトロルミネッセンス素子と、前 記色変換部が前記発光層からの発光を吸収し緑色に変換 する緑色変換部である請求項14に記載の第2の有機エ レクトロルミネッセンス素子と、前記色変換部が前記発 光層からの発光を吸収し赤色に変換する赤色変換部であ る請求項14に記載の第3の有機エレクトロルミネッセ ンス素子とから構成されるフルカラーの表示デバイス。

【請求項20】 基体上に、一対の電極および該一対の電極に挟持される有機化合物薄膜を有する有機エレクトロルミネッセンス素子の前記一対の電極に電圧をかけて発光させる発光方法において、

前記有機化合物薄膜は発光層と、

前記発光層と隣接する隣接層とを有し、

前記発光層を構成する発光材料および前記隣接層を構成する隣接層材料それぞれの蛍光極大波長が415 nm以下であることを特徴とする発光方法。

【請求項21】 基体上に、一対の電極および該一対の 電極に挟持される有機化合物薄膜を有する有機エレクト ロルミネッセンス素子において、

50 前記有機化合物薄膜は発光層と、

3

前記発光層と隣接する隣接層とを有し、

前記有機エレクトロルミネッセンス素子の電界発光の極大発光波長が415nm以下であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項22】 基体上に、一対の電極および該一対の 電極に挟持される有機化合物薄膜を有する有機エレクト ロルミネッセンス素子において、

前記有機化合物薄膜は発光層と、

前記発光層の両側に隣接するそれぞれ一層ずつの隣接層とを有し、

前記有機エレクトロルミネッセンス素子の電界発光の極大発光波長が415nm以下であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

#### 【発明の詳細な説明】

#### [0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、フラットディスアレイや照明用平面光源、光記憶媒体、電子写真複写機、光通信処理機器等の光源に使用される蛍光極大波長が415nm以下の発光を得る有機エレクトロルミネッセンス素子(以下、有機EL素子と称する)に関するもので 20ある。

#### [0002]

【従来の技術】従来、平面型光源としては、無機エレクトロルミネッセンス素子が使用されてきたが、無機エレクトロルミネッセンス素子を駆動させるためには、交流の高電圧が必要となる。

【0003】最近開発された、有機EL素子は、蛍光性の有機化合物を含む薄膜(有機化合物薄膜)を、陰極と陽極で挟んだ構成を有し、前記有機化合物薄膜に電子及び正孔を注入して再結合させることにより励起子(エキ 30シトン)を生成させ、このエキシトンが失活する際の光の放出(蛍光・燐光)を利用して発光する素子であり、数V~数十V程度の低電圧で発光が可能であり、自己発光型であるために視野角依存性に富み、視認性が高い。更には薄膜型の固体素子であるために省スペース等の観点からも注目され、実用化研究への展開が開始されている。

【0004】これまで様々な有機EL素子が報告されている。たとえば、米国特許第3,530,325号に記載の蛍光性の有機化合物として単結晶アントラセン等を 40用いたもの、特開昭59-194393号に記載の正孔注入層と発光層とを組み合わせたもの、特開昭63-295695号に記載の正孔注入層と電子注入輸送層とを組み合わせたもの、Jpn. Journal of Applied Phisycs,voll27,No.2第269~271頁に記載の正孔移動層と発光層と電子移動層とを組み合わせたものがそれぞれ開示されている。

【0005】しかしながら、エネルギー変換効率、発光 効率の更なる向上や、経時での有機化合物薄膜の安定性 50

の付与など解決すべき問題は多数ある。特に赤色発光の 発光効率は悪く、更なる改善が必要とされている。

【0006】特開平3-152897には、青色もしく は背縁色に発光する有機化合物薄膜からの発光を、蛍光 色素で色変換することにより赤色発光を得る有機EL素 子が開示されているが、青もしくは青緑に吸収を有し、 且つ、赤色に蛍光を持つ蛍光色素は少なく、骨から赤色 への色変換を複数の蛍光色素を用いて段階的に行ってい るため、必ずしも発光効率の満足できるものではない。 【0007】EP1067165Aには、青紫発光ない し紫青領域に発光し、該発光を吸収する蛍光体を組み合 わせることにより、ディスプレイのような情報表示デバ イスや白色照明にも応用されうる有機EL素子が開示さ れている。これは、青紫領域に吸収を有する蛍光体を用 いることができるため、赤色への変換が多段階を経ず一 段階での変換が可能となる。よって、前記特開平3-1 52897号に開示の技術に比べて赤色への変換効率が 高く、省電力なフルカラーディスプレーや白色照明を提 供できる。しかしながら、有機化合物薄膜からの青紫発 光ないし紫青領域の発光の発光効率については、さらな る改良が求められる。

【0008】有機EL素子で紫外発光した例は他に特開 平11-26159号に開示される技術もあるが、単層 構成の有機EL素子であり、外部取り出し量子効率は 0.1%以下であり、発光効率は非常に低い。

【0009】一方、有機EL素子以外の分野における紫外発光デバイスとしては、特開平10-321908号に挙げられるように、高エネルギーバンドギャップを有する窒化物系化合物半導体を利用した半導体素子が開発されている。高エネルギーバンドギャップを有する半導体素子を利用したデバイス例として、青紫色系が発光可能な発光ダイオード(LED)や半導体レーザなどが挙げられる。

【0010】しかし、窒化物系化合物半導体を利用した半導体素子は、GaAs、GaPやInGaAlAsなどの半導体素子とは異なり単結晶を形成させることが難しい。結晶性の良い窒化物系化合物半導体の単結晶膜を得るために、MOCVD法やHDVPE法を用いサファイア基板上にバッファ層を介して形成させることが行われている。これら半導体素子を用いることにより近紫外光すなわち青紫発光もしくは415nm以下に発光極大波長を有する発光デバイスを提供することは可能であるが、LEDは無機半導体の単結晶膜を必要とするため、非常に作製が困難であり、製造のエネルギーもかかる。更に、点光源であるために、樹脂フィルム等を基体としたフレキシブルデバイスの作製はほぼ不可能であるといえる。

【0011】また最近、無機EL素子においても、The 10th international work

shop on inorganic and org anic electroluminescence (EL'00)予稿集P-19に記載されているよう に、紫外発光デバイスの研究がなされているが、無機E L素子は通常100V程度の高電圧が必要な上、発光の エネルギー効率も低くモバイル機器等への搭載は不向き である。

#### [0012]

【発明が解決しようとする課題】上記課題を鑑み、本発 明の目的は、省電力で面状発光し、フレキシブルデバイ スの作製が可能であり、発光効率が高い発光極大波長が 415 nm以下の有機EL素子、該有機EL素子を用い た発光光源、照明装置、表示デバイス及び発光方法を提 供することである。

#### [0013]

【課題を解決するための手段】上記本発明の目的は、以 下の構成により達成された。

【0014】1. 基体上に、一対の電極および該一対の 電極に挟持される有機化合物薄膜を有する有機エレクト ロルミネッセンス素子において、前記有機化合物薄膜は 20 エレクトロルミネッセンス素子。 発光層と、前記発光層と隣接する隣接層とを有し、前記 発光層を構成する発光材料および前記隣接層を構成する 隣接層材料それぞれの蛍光極大波長が415 nm以下で あることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素 子。

【0015】2. 前記有機エレクトロルミネッセンス素 子の電界発光の極大発光波長が415 nm以下であるこ とを特徴とする上記1に記載の有機エレクトロルミネッ センス素子。

【0016】3. 前記発光層が電子輸送型発光層であ り、且つ、前記隣接層が正孔輸送層であることを特徴と する上記1または2に記載の有機エレクトロルミネッセ ンス素子。

【0017】4. 前記正孔輸送層が接する側とは反対側 の前記電子輸送型発光層の隣接層として電子輸送層を有 し、前記電子輸送層を構成する電子輸送材料の蛍光極大 波長が415 nm以下であることを特徴とする上記3に 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0018】5. 前記正孔輸送層を構成する正孔輸送材 料のイオン化ポテンシャルが5.7eV以下であり、前 40 光光源。 記正孔輪送材料の蛍光極大波長が前記電子輸送型発光層 を構成する発光材料の蛍光極大波長よりも短波長である ことを特徴とする上記3または4に記載の有機エレクト ロルミネッセンス素子。

【0019】6. 前記正孔輸送材料のイオン化ポテンシ ャルが、前記発光材料のイオン化ポテンシャルよりも小 さいことを特徴とする上記5に記載の有機エレクトロル ミネッセンス素子。

【0020】7. 前記発光層が正孔輸送型発光層であ り、且つ、前記隣接層が電子輸送層であることを特徴と 50 層からの発光を吸収し赤色に変換する赤色変換部である

する上記1または2に記載の有機エレクトロルミネッセ ンス素子。

【0021】8. 前記正孔輸送層が接する側とは反対側 の前記電子輸送型発光層の隣接層として電子輸送層を有 し、前記正孔輸送層を構成する正孔輸送材料の蛍光極大 波長が415 nm以下であることを特徴とする上記7に 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0022】9.前記電子輸送層を構成する電子輸送材 料の電子親和力が2.5eV以上であり、前記電子輸送 10 材料の蛍光極大波長が前記正孔輸送型発光層を構成する 発光材料の蛍光極大波長よりも短波長であることを特徴 とする上記7または8に記載の有機エレクトロルミネッ センス素子。

【0023】10.前記電子輸送材料の電子親和力が、 前記発光材料の電子親和力よりも大きいことを特徴とす る上記9に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。 【0024】11.前記有機化合物薄膜を構成する全材 料のそれぞれのガラス転移点が100度以上であること を特徴とする上記1~10のいずれか1項に記載の有機

【0025】12. 前記基体が樹脂フィルムであること を特徴とする上記1~11のいずれか1項に記載の有機 エレクトロルミネッセンス素子。

【0026】13. 前記有機エレクトロルミネッセンス 素子の発光の室温における外部取り出し効率が2%以上 であることを特徴とする上記1~12のいずれか1項に 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0027】14. 前記発光層からの発光を吸収し、該 発光とは異なる色に変換する色変換部とを有することを 30 特徴とする上記1~13のいずれか1項に記載の有機工 レクトロルミネッセンス素子。

【0028】15. 前記発光層からの発光が青紫領域の 色であることを特徴とする上記14に記載の有機エレク トロルミネッセンス素子。

【0029】16. 前記色変換部が、無機蛍光体を含有 することを特徴とする上記14または15に記載の有機 エレクトロルミネッセンス素子。

【0030】17. 上記1~16のいずれか1項に記載 の有機エレクトロルミネッセンス素子から構成される発

【0031】18. 上記1~16のいずれか1項に記載 の有機エレクトロルミネッセンス素子から構成される照 明装置。

【0032】19. 前記色変換部が前記発光層からの発 光を吸収し骨色に変換する青色変換部である上記14に 記載の第1の有機エレクトロルミネッセンス素子と、前 記色変換部が前記発光層からの発光を吸収し緑色に変換 する緑色変換部である上記14に記載の第2の有機エレ クトロルミネッセンス素子と、前記色変換部が前記発光 上記14に記載の第3の有機エレクトロルミネッセンス 案子とから構成されるフルカラーの表示デバイス。

【0033】20. 基体上に、一対の電極および該一対の電極に挟持される有機化合物薄膜を有する有機エレクトロルミネッセンス素子の前記一対の電極に電圧をかけて発光させる発光方法において、前記有機化合物薄膜は発光層と、前記発光層と隣接する隣接層とを有し、前記発光層を構成する発光材料および前記隣接層を構成する隣接層材料それぞれの蛍光極大波長が415nm以下であることを特徴とする発光方法。

【0034】21.基体上に、一対の電極および該一対の電極に挟持される有機化合物薄膜を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記有機化合物薄膜は発光層と、前記発光層と隣接する隣接層とを有し、前記有機エレクトロルミネッセンス素子の電界発光の極大発光波長が415nm以下であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0035】22.基体上に、一対の電極および該一対の電極に挟持される有機化合物薄膜を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記有機化合物薄膜 20は発光層と、前記発光層の両側に隣接するそれぞれ一層ずつの隣接層とを有し、前記有機エレクトロルミネッセンス素子の電界発光の極大発光波長が415nm以下であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0036】以下、本発明について詳細に説明する。本 発明の有機EL素子は、基体上に、一対の電極および該 一対の電極に挟持される有機化合物薄膜を有するもので ある

【0037】前記有機化合物薄膜は複数層構成である。 ただし、該複数層構成において、有機物以外の層(例えばフッ化リチウム層や無機金属塩の層、またはそれらを含有する層など)が任意の位置に配置されていてもよい。

【0038】前記有機化合物薄膜は、前記一対の電極から注入された電子及び正孔が再結合して発光する領域 (発光領域)を有する発光層および該発光層と隣接する 隣接層の少なくとも2層を有する。前記発光領域は、発 光層の層全体であってもよいし、発光層の厚みの一部分 であってもよい。また、発光層と隣接層との界面であっ てもよい。本発明において、発光領域が2層にわたる場 合には、どちらか一層を発光層ととらえ、もう一層を前 記発光層の隣接層ととらえる。

【0039】前記隣接層については後述するが、その機能によって大きくは正孔輸送層と電子輸送層に分類することができる。さらに細かく機能分類すると、正孔注入層、正孔輸送層、電子阻止層、電子注入層、電子輸送層、正孔阻止層等がある。

【0040】そして、本発明においては、前記発光層を 送能を有するもの(電子輸送型発光層と称する)または 構成する発光材料および前記隣接層を構成する隣接層材 50 正孔輸送能を有するもの(正孔輸送型発光層と称する)

料それぞれの蛍光極大波長が415 nm以下である。

【0041】本発明において、発光材料または隣接層材料の蛍光極大波長が415nm以下であるとは、前記発光材料または前記隣接層材料が蒸着可能な化合物であるならば蒸着膜、高分子化合物ならスピンコートやキャストコートもしくはインクジェットなどの方法により膜の状態とし、当該膜において測定した蛍光極大波長が415nm以下ということである。

【0042】蛍光極大波長とは蛍光スペクトルにおける 10 極大値を与える波長のことであり、その材料の物性を規 定する指標である。もし、複数個の極大波長がある場合 は長波長側の方を蛍光極大波長とする。つまり、蛍光を 与える励起状態が複数ある場合でも、一番エネルギーが 低い最低励起状態のことを意味する。蛍光の強度は関係 しない。蛍光強度が非常に弱い場合に於いても蛍光極大 波長が415nm以下であればよい。ただし、発光材料 のうち少なくとも一種は蛍光量子収率が0.5以上であ ることが好ましい。

【0043】また、本発明の有機EL素子は、電界発光の極大発光波長が415nm以下である。電界発光の極大発光波長とは、有機EL素子の一対の電極に電圧を印加して、それぞれの電極から電子および正孔が注入され、発光層でそれらが再結合して発光したときの当該発光において、発光スペクトルにおける極大値を与える波長の波長のことである。もし、複数個の極大発光波長がある場合は、蛍光強度が一番強い極大発光波長のことである。

【0044】このような電界発光の色としては、青紫発光であることが好ましい。青紫発光の青紫とは分光放射 輝度計CS-1000(ミノルタ製)等の測定器で測定し、その結果、座標が、CIE色度座標(「新編色色彩科学ハンドブック」108頁の図4.16(日本色彩学会編、東京大学出版会、1985))に当てはめたとき、Purplish Blue(紫青)、または、Bluish Purple(青紫)の領域にある場合をいう。

【0045】前記発光層は、(1)電界印加時に、陽極から正孔注入層、正孔輸送層または正孔輸送型発光層により正孔を注入することができ、かつ陰極から電子輸送層、電子注入層または電子輸送型発光層により電子を注入することができる注入機能、(2)注入した電荷(電子と正孔)を電界の力で移動させる輸送機能、(3)電子と正孔の再結合の場を発光層内部に提供し、これを発光につなげる発光機能などを有している。ただし、正孔の注入されやすさと電子の注入されやすさに違いがあってもよく、また、正孔と電子の移動度で表される輸送機能に大小があってもよいが、どちらか一方の電荷を移動させる機能を有するものが好ましい。すなわち、電子輸送能を有するもの(電子輸送型発光層と称する)または正和輸送能を有するもの(正和輸送型発光層と称する)

が好ましい。

【0046】電子輸送型発光層とは、電子輸送能を有する発光層のことであり、基本的には隣接する正孔輸送層、正孔注入層もしくは電子阻止層との界面に正孔と電子の再結合領域ならびに発光領域を有する。ただし、発光は電子輸送型発光層の発光材料からの発光である。

光は電子輸送型発光層の発光材料からの発光である。 【0047】正孔輸送型発光層とは、正孔輸送能を有する発光層のことであり、基本的には隣接する電子輸送層、電子注入層、もしくは正孔阻止層との界面に正孔と電子の再結合領域ならびに発光領域を有する。ただし、発光は正孔輸送型発光層の発光材料からの発光である。 【0048】本発明において、一対の電極および有機化合物薄膜の層構成の好ましい具体例を以下に示すが、これに限定されるものではない。

- (i)陽極/正孔輸送層/電子輸送型発光層/陰極
- (ii) 陽極/正孔翰送層/電子翰送型発光層/電子翰送 層/陰極
- (iii) 陽極/正孔注入層/正孔輸送層/電子輸送型発 光層/陰極
- (iv) 陽極/正孔輸送型発光層/電子輸送層/陰極
- (v) 陽極/正孔輸送層/正孔輸送型発光層/電子輸送 層/陰極
- (vi) 陽極/正孔注入層/正孔輪送層/正孔輪送型発光 層/電子輸送層/電子注入層
- (vii) 陽極/正孔翰送曆/電子翰送型発光曆/電子翰 送曆/陰極
- (viii) 陽極/正孔輸送型発光層/電子輸送層/電子注 入層/陰極
- (ix) 陽極/正孔注入層/正孔輪送型発光層/正孔阻止層/電子輸送層/電子注入層/陰極

上記において、正孔輸送型発光層および電子輸送型発光 層が本発明における発光層であり、また、該発光層に接 して隣り合う層が隣接層である。

【0049】有機EL素子における陽極としては、仕事 関数の大きい (4 e V以上) 金属、合金、電気伝導性化 合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好まし く用いられる。このような電極物質の具体例としてはA uなどの金属、CuI、インジウムチンオキシド(IT O)、SnOz、ZnOなどの導電性透明材料が挙げら れる。また、IDIXO (In2O3-ZnO)など非晶 質で透明尊電膜を作製可能な材料を用いても良い。該陽 極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリングなどの 方法により、薄膜を形成させ、フォトリソグラフィー法 で所望の形状のパターンを形成してもよく、あるいはパ ターン精度をあまり必要としない場合は(100μm以 上程度)、上記電極物質の蒸着やスパッタリング時に所 望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。 この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を10% より大きくすることが望ましく、また、陽極としてのシ ート抵抗は数百Ω/□以下が好ましい。さらに関厚は材 50

10 料にもよるが、通常10nm~1µm、好ましくは10 ~200nmの範囲で選ばれる。

【0050】一方、陰極としては、仕事関数の小さい (4 e V以下) 金属 (電子注入性金属と称する)、合 金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質と するものが用いられる。このような電極物質の具体例と しては、ナトリウム、ナトリウムーカリウム合金、マグ ネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、マグネ シウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合 10 物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニウム/ 酸化アルミニウム (Al2〇3) 混合物、インジウム、リ チウム/アルミニウム混合物、希土類金属などが挙げら れる。これらの中で、電子注入性及び酸化などに対する 耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の 値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、例え ばマグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウ ム混合物、マグネシウム/インジウム混合物、アルミニ ウム/酸化アルミニウム (A 12O3) 混合物、リチウム /アルミニウム混合物、アルミニウムなどが好適であ 20 る。該陰極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリン グなどの方法により、薄膜を形成させることにより、作

グなどの方法により、薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、陰極としてのシート抵抗は数百Ω/□以下が好ましく、膜厚は通常10nm~1μm、好ましくは50~200nmの範囲で選ばれる。なお、発光を透過させるため、有機EL素子の陽極又は陰極のいずれか一方が、透明又は半透明であれば発光効率が向上し好都合である。

【0051】次に、本発明において、発光層と隣接する 隣接層としての注入層、正孔輪送層、電子輸送層等につ 30 いて説明する。

【0052】注入層は必要に応じて設け、電子注入層と 正孔注入層があり、上記のごとく陽極と発光層または正 孔輸送層の間、および、陰極と発光層または電子輸送層 との間に存在させてもよい。

【0053】注入層とは、駆動電圧低下や発光効率向上のために電極と有機層間に設けられる層のことで、「有機EL素子とその工業化最前線(1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行)」の第2編第2章「電極材料」(第123頁~第166頁)に詳細に記載されており、正孔注入層(陽極バッファー層)と電子注入層(陰極バッファー層)とがある。

【0054】陽極バッファー層(正孔注入層)は、特開 平9-45479号、同9-260062号、同8-288069号等にもその詳細が記載されており、具体例 として、銅フタロシアニンに代表されるアタロシアニンバッファー層、酸化バナジウムに代表される酸化物バッファー層、アモルファスカーボンバッファー層、ポリアニリン(エメラルディン)やポリチオフェン等の導電性 高分子を用いた高分子バッファー層等が挙げられる。

50 【0055】陰極バッファー層(電子注入層)は、特開

平6-325871号、同9-17574号、同10-74586号等にもその詳細が記載されており、具体的にはストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属バッファー層、フッ化リチウムに代表されるアルカリ金属化合物バッファー層、フッ化マグネシウムに代表されるアルカリ土類金属化合物バッファー層、酸化アルミニウムに代表される酸化物バッファー層等が挙げられる。【0056】上記バッファー層(注入層)はごく薄い膜であることが望ましく、素材にもよるが、その膜厚は0.1~100nmの範囲が好ましい。

【0057】阻止層は、上記のごとく、有機化合物薄膜の基本構成層の他に必要に応じて設けられるものである。例えば特開平11-204258号、同11-204359号、および「有機EL素子とその工業化最前線(1998年11月30日 エヌ・ティー・エス社発行)」の第237頁等に記載されている正孔阻止(ホールブロック)層がある。

【0058】正孔阻止層とは広い意味では電子輸送層であり、電子を輸送する機能を有しつつ正孔を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、電子を輸送しつつ正孔 20を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。

【0059】一方、電子阻止層とは広い意味では正孔輸送層であり、正孔をを輸送する機能を有しつつ電子を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、正孔を輸送しつつ電子を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。

【0060】正孔輪送層とは正孔を輸送する機能を有する材料からなり、広い意味で正孔注入層、電子阻止層も 正孔輸送層に含まれる。

【0061】正孔翰送層は単層もしくは複数層設けることができるが、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子においては、発光層が電子輸送型発光層であって、その隣接層が正孔輸送層である場合には、該正孔輸送層を構成する正孔輸送材料の蛍光極大波長が415nm以下であることが好ましい。また、このような層構成の場合において、さらに前記正孔輸送層と接する側とは反対側の前記電子輸送型発光層の隣接層として電子輸送層を有し、該電子輸送層を構成する電子輸送材料の蛍光極大波長が415nmであることが好ましい。つまり、発光 40層をはさんだ3層すべての材料の蛍光極大波長が415nm以下であることが好ましい。蛍光極大波長が415nm以下であることが好ましい。蛍光極大波長については、上述した通りである。

【0062】蛍光極大波長が415nm以下の正孔輸送 材料としては、特に制限はなく、従来、光導伝材料において、正孔の電荷注入輸送材料として慣用されているものやEL素子の正孔注入層、正孔輸送層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

【0063】正孔翰送材料は、正孔の注入もしくは輸

送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。正孔輸送材料としては、例えばトリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共10 重合体、また、導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマーなどが挙げられる。

【0064】正孔輸送材料としては、上記のものを使用することができるが、ボルフィリン化合物、芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物、特に芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。

【0065】上記芳香族第三級アミン化合物及びスチリ ルアミン化合物の代表例としては、N,N,N',N' ーテトラフェニルー4, 4'ージアミノフェニル; N, N'ージフェニルーN, N'ーピス(3-メチルフェニ ル) - (1, 1'-ピフェニル) -4, 4'-ジアミン (TPD); 2, 2-ピス(4-ジ-p-トリルアミノ フェニル) プロパン: 1, 1-ビス(4-ジーp-トリ ルアミノフェニル) シクロヘキサン: N, N, N', N'ーテトラーpートリルー4, 4'ージアミノビフェ ニル; 1, 1-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニ ル) -4-フェニルシクロヘキサン; ビス (4-ジメチ ルアミノー2-メチルフェニル) フェニルメタン; ピス (4-ジーpートリルアミノフェニル) フェニルメタ ン; N, N'ージフェニルーN, N'ージ (4ーメトキ 30 > 7 = 2 + 1 > 7 = 2 + 1 > 7 = 2 + 1 > 1 N, N', N'-テトラフェニル-4, 4'-ジアミノ ジフェニルエーテル; 4, 4'ービス (ジフェニルアミ ノ) クオードリフェニル; N, N, N-トリ (p-トリ  $\nu$ ) アミン;  $4-(ジ-p-h) \mu アミノ) -4'-$ 〔4-(ジーp-トリルアミノ) スチリル〕 スチルベ ン; 4-N, N-ジフェニルアミノ-(2-ジフェニル ビニル) ベンゼン; 3-メトキシ-4'-N, N-ジフ ェニルアミノスチルベンゼン; N-フェニルカルバゾー ル、さらには、米国特許第5061569号明細書に記 載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有するも の、例えば4, 4'-ビス (N-(1-ナフチル)-N **-フェニルアミノ〕 ビフェニル(NPD)、特開平4-**308688号公報に記載されているトリフェニルアミ ンユニットが3つスターバースト型に連結された4, 4', 4''ートリス (N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ) トリフェニルアミン (MTDAT A) などが挙げられる。

【0066】さらにこれらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材 50 料を用いることもできる。 【0067】また、p型-Si,p型-SiCなどの無 機化合物も正孔注入材料、正孔輸送材料として使用する ことができる。

【0068】正孔翰送材料は、正孔翰送能を有しつつかつ、発光の長波長化を防ぎ、なおかつ高Tgである化合物が好ましい。

【0069】このような有機化合物は具体的な一例としてはπ電子平面を立体障害等の効果により非平面的することで得られる。例としてはトリアリールアミンのアリール基のオルト位(窒素原子から見た)に立体障害性の置換基を導入することが挙げられる。これによりねじれ角を増強される。

【0070】すなわち、メチル基、tーブチル基、イソ プロビル基、ナフチル基のペリ位水素原子等の立体障害 1

のある置換基を有機化合物内に効果的に配置することにより、高Tg正孔輸送化合物のTgを下げることなく、 多少の正孔輸送能の低下が見られるが短波長発光を有する正孔輸送化合物が得られる。但し、置換基は上記に限定するものではない。

【0071】また、芳香環に共役する基を導入する場合に非共役する位に導入する(例えば、トリフェニルアミンの場合フェニル基のメタ位)ことでも得られる。

ことで得られる。例としてはトリアリールアミンのアリ 【0072】このように立体障害置換基を有する正孔輪ール基のオルト位(窒素原子から見た)に立体障害性の 10 送材料及び非共役型正孔輪送材料の化合物例を以下に挙置換基を導入することが挙げられる。これによりねじれ げるがこれに限定するものではない。

[0073]

【化1】

15 **1-1** 

H<sub>3</sub>C
CH<sub>3</sub>
CH<sub>3</sub>

<u>i</u>-2

1-3

1-4

$$CH_3$$
 $(t)C_4H_9$ 
 $CH_3$ 
 $CH_3$ 

[0074]

\* \*【化2】

$$H_3CO$$
 $C_4H_9(t)$ 
 $C_4H_9(t)$ 

# 1-6

$$CH_3$$

$$(t)C_4H_9O$$

$$OC_4H_9(t)$$

$$CH_3$$

## 1-7

$$CH_3$$
  $H_3C$ 
 $C_4H_9(t)$ 
 $CH_3$   $H_3C$ 

## 1-8

[0075]

\* \*【化3】

## 1-10

# 1-11

## 1-12

## [0076]

<sup>2</sup> 1 1 - 13 22

1-14

1-15

1-16

[0077]

\*【化5】

23 1-17

1-18

1-19

1-20

【0078】 【化6】

1-21

25

1-23

26

1-22

1-24

20

30

【0080】 【化8】

【0079】 【化7】

1-**25** 

[0081]

1-26

30

<sup>29</sup>1-**27** 

1-28

[0082]

\*【化10】

<sup>31</sup> 1-29

1-30

[0083]

【0084】この正孔輸送層は、上記正孔輸送材料を、 例えば真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、イン クジェット法、LB法などの公知の方法により、薄膜化 することにより形成することができる。正孔輪送層の膜 厚については特に制限はないが、通常は5nm~5µm 程度である。この正孔輸送層は、上記材料の一種又は二 種以上からなる一層構造であっても良い。

33

【0085】正孔輸送層が、発光層に隣接しない場合の 正孔輸送材料については、蛍光極大波長が415 nmを いて、正孔の電荷注入輸送材料として慣用されているも のやE L素子の正孔注入層、正孔輸送層に使用される公 知のものの中から任意のものを選択して用いることがで きる。

【0086】本発明において、発光層が電子輸送型発光 層で、且つ、隣接層が正孔輸送層である場合、前記正孔 輸送層を構成する正孔輸送材料のイオン化ポテンシャル が5.7eV以下であって、前記正孔輸送材料の蛍光極 大波長が、前記電子輸送型発光層を構成する発光材料の 蛍光極大波長よりも短波長であることが好ましい。また 20 料を用いることもできる。 この場合、前記正孔輸送材料のイオン化ポテンシャル が、前記発光材料のイオン化ポテンシャルよりも小さい ことが好ましい。

【0087】正孔輸送材料のイオン化ポテンシャルと は、化合物のHOMO(最高被占分子軌道)レベルにあ る電子を真空準位放出するのに必要なエネルギーで定義 され、当該正孔輸送材料で蒸着膜を形成するか、スピン コート膜を形成するかもしくは粉体のままの状態で光電 子分光法により直接測定した値である。

【0088】蛍光極大波長については上述の通りであ る。また、イオン化ポテンシャルが小さいとは、よりH OMO準位から電子を足り出しやすいことを意味し、す なわち酸化されやすいことを意味する。

【0089】電子輸送層とは電子を輸送する機能を有す る材料からなり、広い意味で電子注入層、正孔阻止層も 電子輸送層に含まれる。

【0090】電子輸送層は単層もしくは複数層設けるこ とができる。本発明において、発光層が正孔輸送型発光 層であり、電子輸送層が発光層と隣接する隣接層である 場合には、当該電子輸送層を構成する電子輸送材料の蛍 40 ンの場合フェニル基のメタ位)ことでも得られる。 光極大波長が415 nm以下であることが好ましい。ま た、このような層構成の場合、さらに前記電子輸送層と 接する側とは反対側の前記正孔輸送型発光層の隣接層と して正孔輸送層を有し、該正孔輸送層を構成する正孔輸 送材料の蛍光極大波長が415nmであることが好まし い。つまり、発光層をはさんだ3層すべての材料の蛍光

極大波長が415 n m以下ということである。 蛍光極大 波長については、上述した通りである。

【0091】蛍光極大波長が415nm以下の電子輸送 材料としては、特に制限はなく、公知のものの中から任 意のものを選択して用いることができる。

【0092】この電子輸送材料の例としては、フェナン トロリン誘導体、ビビリジン誘導体、ニトロ置換フルオ レン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオ キシド誘導体、ナフタレンペリレンなどの複素環テトラ 越えてもよく、特に制限はない。従来、光導伝材料にお 10 カルボン酸無水物、カルボジイミド、フレオレニリデン メタン誘導体、アントラキノジメタン及びアントロン誘 導体, オキサジアゾール誘導体などが挙げられる。 さら に、上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジア ゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチアジアゾー ル誘導体、電子吸引基として知られているキノキサリン 環を有するキノキサリン誘導体も、電子輸送材料、電子 注入材料として用いることができる。

> 【0093】さらにこれらの材料を高分子鎖に導入し た、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材

【0094】また金属錯体を用いることもできる。本発 明の電子輸送材料としては、電子輸送能を有しつつか つ、発光の長波長化を防ぎ、なおかつ高丁gである化合 物が好ましい。

【0095】このような有機化合物は具体的な一例とし てはπ電子平面を立体障害等の効果により非平面的する ことで得られる。例としてはトリアリールアミンのアリ ール基のオルト位(窒素原子から見た)に立体障害性の 置換基を導入することが挙げられる。これによりねじれ 30 角を増強される。

【0096】すなわち、メチル基、セーブチル基、イソ プロビル基、ナフチル基のペリ位水素原子等の立体障害 のある置換基を有機化合物内に効果的に配置することに より、高Tg電子輸送化合物のTgを下げることなく、 多少の電子輸送能の低下が見られるが短波長発光を有す る電子輸送化合物が得られる。但し、置換基は上記に限 定するものではない。

【0097】また、芳香環に共役する基を導入する場合 に非共役する位に導入する(例えば、トリフェニルアミ

【0098】このように立体障害置換基を有する電子輪 送材料および非共役型電子輸送材料の化合物例、を以下 に挙げるがこれに限定するものではない。

[0099]

【化12】

[0100]

\* \*【化13】

【0101】この電子輸送層は、上記化合物を、例えば真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法、インクジェット法などの公知の薄膜化法により製膜して形成することができる。電子輸送層、電子注入層としての膜厚は、特に制限はないが、通常は0.1nm~5μmの範囲で選ばれる。この電子輸送層、電子注入層は、これらの電子輸送材料一種又は二種以上からなる一層構造であってもよい。

【0102】電子輸送層が、発光層に隣接しない場合には、電子輸送層を構成する電子輸送材料は、蛍光極大波長が415nmを越えてもよくい。その場合には特に制限はなく、公知のものの中から任意のものを選択して用40いることができる。

【0103】本発明において、発光層が正孔輪送型発光層で、且つ、隣接層が電子輸送層である場合、前記電子輸送層を構成する電子輸送材料の電子親和力が2.5e V以上であって、前記電子輸送材料の蛍光極大波長が、前記正孔輪送型発光層を構成する発光材料の蛍光極大波長が、前記正孔輪送型発光層を構成する発光材料の蛍光極大波長よりも短波長であることが好ましい。またこの場合、前記電子輸送材料の電子親和力が、前記発光材料の電子親和力よりも小さいことが好ましい。

【0104】電子親和力とは真空準位にある電子が化合\*50

2-7

\*物のLUMO(最低空分子軌道)レベルに落ちて安定化 30 するエネルギーで定義され、イオン化ポテンシャルの値 に吸収スペクトルの吸収端のエネルギー値を加えたもの である。イオン化ポテンシャルは上述の通りである。

【0105】また、蛍光極大波長とは上述と同義である。また、電子親和力が大きいとはLUMO準位に真空準位から電子が入りやすく安定化エネルギーが大きいことを意味し、すなわち還元されやすいことを意味する。【0106】次に発光層を構成する発光材料について説明する。発光材料は、蛍光または燐光を発する有機化合物または錯体であることが好ましく、本発明においては、蛍光極大波長が415nm以下であることが必要である。このようば発光材料としては、有機Eし素子の発光層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

【0107】また、前記の正孔輸送材料や電子輸送材料の殆どが発光材料としても使用できる。

【0108】発光材料はポリビニルカルバゾールやポリフルオレンのような高分子材料でも良く、さらに前記発 光材料を高分子鎖に導入した、または前記発光材料を高分子の主鎖とした高分子材料を使用しても良い。

【0109】また、発光層にはドーパント(ゲスト物

質)を併用してもよく、EL素子のドーパントとして使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

【0110】発光材料としては、正孔輸送能、電子輸送 能を有しつつかつ、発光の長波長化を防ぎ、なおかつ高 Tgである化合物が好ましい。

【0111】このような有機化合物は具体的な一例としてはπ電子平面を立体障害等の効果により非平面的することで得られる。例としてはトリアリールアミンのアリール基のオルト位(窒素原子から見た)に立体障害性の置換基を導入することが挙げられる。これによりねじれ角を増強される。

【0112】すなわち、メチル基、t-ブチル基、イソ プロビル基、ナフチル基のベリ位水素原子等の立体障害\* \*のある置換基を有機化合物内に効果的に配置することにより、高丁g正孔輸送化合物、高丁g電子輸送化合物の Tgを下げることなく、多少の正孔輸送能、電子輸送能 の低下が見られるが短波長発光を有する発光材料が得られる。但し、置換基は上記に限定するものではない。

【0113】また、芳香環に共役する基を導入する場合 に非共役する位に導入する(例えば、トリフェニルアミンの場合フェニル基のメタ位)ことでも得られる。

ことで得られる。例としてはトリアリールアミンのアリ 【0114】このように立体障害置換基を有する発光材ール基のオルト位(窒素原子から見た)に立体障害性の 10 料、非共役型発光材料の化合物例を以下に挙げるがこれ置換基を導入することが挙げられる。これによりねじれ に限定するものではない。

[0115]

【化14】

3-2

[0116]

※ ※【化15】

## 3-4

# [0117]

\* \* (化16)

43 3-5

3-6

[0118]

\* \*【化17】

【0119】この発光層は、上記化合物を、例えば真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法、インクジェット法などの公知の薄膜化法により製膜して形成することができる。発光層としての膜厚は、特に制限はないが、通常は5nm~5μmの範囲で選ばれる。この発光層は、これらの発光材料一種又は二種以上からなる一層構造であってもよいし、あるいは、同一組成又は異種組成の複数層からなる積層構造であってもよい。

\*【0120】本発明の有機EL素子において、有機化合物薄膜を構成する全材料のそれぞれのガラス転移点(Tg)は、100度以上であることが、有機EL素子の寿命を延ばすことになり好ましい。また、有機EL素子自体にフレキシブル性を与えることになる。Tgは、示差走査熱量測定法(DSC)により測定される。

【0121】本発明の有機EL素子に好ましく用いられ \*50 る基体は、ガラス、プラスチックなどの種類には特に限 定はなく、また、透明のものであれば特に制限はないが、好ましく用いられる基板としては例えばガラス、石英、光透過性樹脂フィルムを挙げることができる。

【0122】特に好ましい基体としては、有機EL素子 にフレキシブル性を与えることが可能な樹脂フィルムで ある。

【0123】樹脂フィルムとしては、例えばポリエチレンテレフタレート(PET)、ポリエチレンナフタレート(PEN)、ポリエーテルスルホン(PES)、ポリエーテルイミド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリフェニレンスルフィド、ポリアリレート、ポリイミド、ポリカーボネート(PC)、セルローストリアセテート(TAC)、セルロースアセテートプロピオネート(CAP)等からなるフィルム等が挙げられる。

【0124】樹脂フィルムの表面には、無機物もしくは 有機物の被膜またはその両者のハイブリッド被膜が形成 されていても良い。

【0125】本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の発光の室温における外部取り出し効率は1%以上であることが好ましく、より好ましくは2%以上である。 【0126】尚、外部取り出し量子効率(%)=有機E し素子外部に発光した光子数/有機Eし素子に流した電子数×100である。

【0127】さらに、本発明の有機EL素子は、発光層からの発光を吸収し、該発光とは異なる色に変換する色変換部を有することが好ましい。

【0128】色変換部としては、蛍光体を含有した色変換フィルターまたはカラーフィルター等の色相改良フィルター等がある。

【0129】色変換部は、発光層からの発光を吸収出来 30 る位置であればどこに設けても構わないが、基体に隣接 して設けることが好ましい。

【0130】前記色変換フィルターに含有される蛍光体 としては有機蛍光体でも無機蛍光体でも良い。

【0131】有機蛍光体の例としてはレーザー色素等を 用いても良い。好ましくは蛍光量子収率の高い蛍光色素 である。

【0132】蛍光体としては、無機蛍光体の方が好ましい。無機蛍光体は希土類錯体系蛍光体を含む。

【0133】無機蛍光体の組成は特に制限はないが、結 40 晶母体であるY2O2S、Zn2SiO4、Ca5 (PO4) 3Cl等に代表される金属酸化物及びZnS、SrS、 CaS等に代表される硫化物に、Ce、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb等の希土類金属のイオンやAg、Al、Mn、In、Cu、Sb等の金属のイオンを賦活剤または共賦活剤として組み合わせたものが好ましい。

【 0 1 3 4 】 結晶母体を更に詳しく説明すると、結晶母体としては金属酸化物が好ましく、例えば、 (X) 3 A 1 16 O 27、 (X) 4 A 1 16 O 25、 (X) 3 A 12 S i

2O<sub>10</sub> (X)<sub>4</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub> (X)<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>5</sub> (X)<sub>2</sub>P 2O<sub>7</sub> (X)<sub>2</sub>P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> (X)<sub>5</sub> (PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>C<sub>1</sub> (X) 2Si<sub>3</sub>O<sub>8</sub>-2 (X) C<sub>1</sub><sub>2</sub>

48

〔ここで、Xはアルカリ土類金属を表す。なお、Xで表されるアルカリ土類金属は単一成分でも2種類以上の混合成分でもよく、その混合比率は任意でよい。〕のようなアルカリ土類金属で置換された酸化アルミニウム、酸化ケイ素、リン酸、ハロリン酸等が代表的な結晶母体として挙げられる。

【0135】その他の好ましい結晶母体としては、亜鉛の酸化物および硫化物、イットリウムやガドリウム、ランタン等の希土類金属の酸化物およびその酸化物の酸素の一部を硫黄原子に換えた(硫化物)もの、および希土類金属の硫化物およびそれらの酸化物や硫化物に任意の金属元素を配合したもの等が挙げられる。

【0136】結晶母体の好ましい例を以下に列挙する。
Mg4GeO5.5F、Mg4GeO6、ZnS、Y2O2S、
Y3Al5O12、Y2SiO10、Zn2SiO4、Y2O3、
BaMgAl10O17、BaAl12O19、(Ba、Sr、
20 Mg)O・aAl2O3、(Y、Gd)BO3、(Zn、Cd)S、SrGa2S4、SrS、GaS、SnO2、
Ca10(PO4)6(F、Cl)2、(Ba、Sr)(Mg、Mn)Al10O17、(Sr、Ca、Ba、Mg)10(PO4)6Cl2、(La、Ce)PO4、CeMgAl11O19、GdMgB5O10、Sr2P2O7、Sr4Al14O25、Y2SO4、Gd2O2S、Gd2O3、YVO4、Y(P、V)O4等である。

【0137】以上の結晶母体及び賦活剤または共賦活剤は、同族の元素と一部置き換えたものでも構わないし、とくに元素組成に制限はなく、青紫領域の光を吸収して可視光を発するものであればよい。

【0138】無機蛍光体の賦活剤、共賦活剤として好ましいものは、La、Eu、Tb、Ce、Yb、Pr等に代表されるランタノイド元素のイオン、Ag、Mn、Cu、In、A1等の金属のイオンであり、そのドープ量は母体に対して0.001~100モル%が好ましく、0.01~50モル%がさらに好ましい。

【0139】賦活剤、共賦活剤は結晶母体を構成するイオンの一部を上記ランタノイドのようなイオンに置き換えることでその結晶の中にドープされる。

【0140】蛍光体結晶の実際の組成は、厳密に記載すれば以下のような組成式になるが、賦活剤の量の大小は本質的な蛍光特性に影響を及ぼさないことが多いので、以下特にことわりのない限り下記×やyの数値は記載しないこととする。例えばSr<sup>4-</sup>1Al<sub>14</sub>O<sub>25</sub>: Eu<sup>2+</sup>と表記する

【0141】以下に代表的な無機蛍光体(結晶母体と賦活剤によって構成される無機蛍光体)の組成式を記載す 50 るが、本発明はこれらに限定されるものではない。(B

```
50
*C1:Eu<sup>2+</sup>1、Sr<sup>2-</sup>1Si<sub>3</sub>O<sub>8</sub>-2SrCl<sub>2</sub>:Eu
```

```
r4-1Al14O25: Eu2+1, (Sr1-1Baz)1-1Al2
                                             2+1 [x, yおよびzはそれぞれ1以下の任意の数を表
Si_2O_8: Eu^{2+}_{1}, Ba^{2-}_{1}SiO_4: Eu^{2+}_{1}, Sr^{2-}_{1}
1SiO4: Eu2+1, Mg2-1SiO4: Eu2+1, (Ba
                                             以下に本発明に好ましく使用される無機蛍光体を示す
Sr)_{1-x}SiO_4: Eu^{2+x}, Y_{2-x-y}SiO_5: C
                                             が、本発明はこれらの化合物に限定されるものではな
e_{3+1}, Tb_{3+y}, Sr^{2-1}P_2O_5: Eu^{2+1}, Sr^{2-1}P_2
O_7: Eu^{2+}_{1}, (Ba_y Ca_z Mg_{1-y-z})_{5-z} (PO_4)_3 *
               [青色発光 無機蛍光化合物]
               (BL-1)
                             Sr2P2O7: Sn4+
                             Sr4Al14O25: Eu2+
               (BL-2)
               (BL-3)
                             BaMgA 110 O17 : Eu2+
               (BL-4)
                             SrGa2S4: Ce3+
                             CaGa2S4: Ce3+
               (BL-5)
               (BL-6)
                              (Ba, Sr) (Mg, Mn) Al<sub>10</sub>O<sub>17</sub>: Eu<sup>2+</sup>
               (BL-7)
                              (Sr, Ca, Ba, Mg)_{10} (PO_4)_6C_{12}: Eu^{2+}
               (BL-8)
                             BaA 12 S i O8 : Eu2+
               (BL-9)
                             Sr2P2O7: Eu2+
               (BL-10)
                             Sr5 (PO4) 3C1: Eu2+
               (BL-11)
                              (Sr, Ca, Ba) 5 (PO<sub>4</sub>) 3C1: Eu<sup>2+</sup>
               (BL-12)
                             BaMg2A 116 O27: Eu2+
               (BL-13)
                              (Ba, Ca) 5 (PO<sub>4</sub>) 3C1: Eu<sup>2+</sup>
                              Ba3MgSi2O8: Eu2+
               (BL-14)
               (BL-15)
                             Sr3MgSi2O8: Eu2+
               [禄色発光 無機蛍光化合物]
               (GL-1)
                              (BaMg) Al<sub>16</sub>O<sub>27</sub>: Eu<sup>2+</sup>, Mn<sup>2+</sup>
               (GL-2)
                              Sr4Al14O25: Eu2+
               (GL-3)
                              (SrBa) Al<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub>: Eu<sup>2+</sup>
               (GL-4)
                              (BaMg) 2SiO4: Eu2+
               (GL-5)
                             Y_2SiO_5:Ce^{3+},Tb^{3+}
               (GL-6)
                              Sr2P2O7-Sr2B2O5: Eu2+
               (GL-7)
                              (BaCaMg) 5 (PO4) 3C1: Eu2+
               (GL-8)
                              Sr2Si3O8-2SrCl2: Eu2+
               (GL-9)
                              Zr2SiO4、MgAl11O19:Ce3+, Tb3+
               (GL-10)
                              Ba2SiO4: Eu2+
               (GL-11)
                              Sr2SiO4: Eu2+
                              (BaSr) SiO4: Eu2+
                (GL-12)
               [赤色発光 無機蛍光化合物]
                (RL-1)
                             Y2O2S: Eu3+
               (RL-2)
                              YA'1 O3 : Eu3+
                             Ca2Y2 (SiO4)6: Eu3+
                (RL-3)
               (RL-4)
                              LiY9 (SiO4) 6O2: Eu3+
                (RL-5)
                              YVO4: Eu3+
                (RL-6)
                              CaS: Eu3+
                (RL-7)
                              Gd2O3: Eu3+
                (RL-8)
                              Gd2O2S: Eu3+
                (RL-9)
                              Y (P, V) O4: Eu3+
                (RL-10)
                             Mg4GeO5.5: Mn4+
```

上記無機蛍光体は、必要に応じて表面改質処理を施して ※学的処理によるものや、サブミクロンオーダーの微粒子もよく、その方法としてはシランカップリング剤等の化※50 等の添加による物理的処理によるもの、さらにはそれら

Mg4GeO6: Mn4\*

(RL-11)

の併用によるもの等が挙げられる。

【0142】シランカップリング剤としては、日本ユニ カー株式会社発行(1997年8月2日)の「NUCシ リコーン シランカップリング剤」カタログに記載され ているものがそのまま使え、その具体例としては、例え ば、β-(3,4-エポキシシクロヘキシル)-エチル トリアルコキシシラン、グリシジルオキシエチルトリエ トキシシラン、アーアクリロイルオキシーnープロピル トリーnープロピルオキシシラン、アーメタクリロイル オキシーnープロピルーnープロピルオキシシラン、ジ 10 (ァーアクリロイルオキシーn-プロピル)ジーn-プ ロピルオキシシラン、アクリロイルオキシジメトキシエ チルシラン、N-β (アミノエチル) ァーアミノプロピ ルトリメトキシシラン、 $N-\beta$  (アミノエチル)  $\gamma$ -ア ミノプロピルメチルジメトキシシラン、ケーアミノプロ ピルトリエトキシシラン、N-フェニルーケーアミノプ ロピルトリメトキシシラン、ケーメルカプトプロピルト リメトキシシランなどが挙げられる。

51

【0143】本発明で用いられる微粒子としては、無機 微粒子であることが好ましく、例えば、シリカ、チタニ 20 ア、ジルコニア、酸化亜鉛等の微粒子が挙げられる。

【0144】本発明に用いられる無機蛍光体は、発光強 度の観点から、製造時に機械的破砕工程を経ない、つま りビルドアップ法で合成されるものが好ましく、特にゾ ルーゲル法等による液相法によって製造されるものが好 ましい。また、組成上は無機酸化物が母体となっている ものが好ましい。

【0145】無機蛍光体は、ゾルーゲル法により製造さ れていることが好ましい。ゾルーゲル法による製造方法 997年アグネ承風社発行)に詳しく書かれているが、 基本的には、溶液から出発し、溶液のゾル化、ゲル化を 経て材料を溶融法よりも低温で合成する方法を意味し、 本発明でいう「ゾルーゲル法」とは、蛍光体製造の少な くとも1工程で液相法での反応を行うことを指し、通常 の無機蛍光体合成に適用される溶融反応で行う合成法と 区別することができる。本発明のゾルーゲル法は、一般 的には母体または賦活剤または共賦活剤に用いる元素 (金属)を例えばテトラメトキシシラン (Si (OCH 3)4) やユーロピウム=2, 4=ペンタンジオネート (Eu³+ (CH3COCH=C (O-) CH3)3)等の 金属アルコキシドや金属錯体、またはそれらの有機溶媒 溶液に金属単体を加えて作るダブルアルコキシド(例え ばA1 (OBu) 3の2ープタノール溶液に金属マグネ シウムを加えて作るMg[Al(OBu)3]2等)、金 属ハロゲン化物、有機酸の金属塩、金属単体として必要 量混合し、液相状態で熱的または化学的に重縮合するこ とによる製造方法を意味し、必要に応じて焼成や遠元処

【0146】なお、前記金属アルコキシド、金属ハロゲ 50

理等を施してもよい。

ン化物、金属塩または金属の「金属」とは、一般に周期 律表等で定義されている「金属類 (Metals)」の 他に「遷移金属(Transition Metal s)」の全ての元素、「ランタノイド」の全ての元素、 「アクチノイド」の全ての元素、および「非金属(No n Metals)」として定義されるホウ素、珪素 (シリコン)を含んだものとして定義する。

【0147】また、特にゾルーゲル法で製造する場合、 蛍光体の前駆溶液または一次粒子を含む液を透明基板に 印刷法やインクジェット法等でパターニングした後に焼 成や還元処理等の結晶化処理または高輝度化処理を施し ても良い。

【0148】希土類錯体系蛍光体としては、希土類金属 としてCe、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、T b、Dy、Ho、Er、Tm、Yb等を有するものが挙 げられ、錯体を形成する有機配位子としては、芳香族 系、非芳香族系のどちらでも良く、好ましく下記一般式 (1)で表される化合物が好ましい。

【0149】一般式(1) Xa-(Lx)-(Ly) n -(Lz)-Ya

[式中、Lx、Ly、Lzはそれぞれ独立に2個以上の 結合手を持つ原子を表わし、nは0または1を表わし、 XaはLxの隣接位に配位可能な原子を有する置換基を 表わし、YaはLzの隣接位に配位可能な原子を有する 置換基を表わす。さらにXaの任意の部分とLxとは互 いに縮合して環を形成してもよく、Yaの任意の部分と Lzとは互いに縮合して環を形成してもよく、LxとL zとは互いに縮合して環を形成してもよく、さらに分子 内に芳香族炭化水素環または芳香族複素環が少なくとも とは、例えば、作花済夫著「ゾルーゲル法の応用」(1 30 一つ存在する。ただし、Xa-(Lx)-(Ly)n- $(Lz) - Yaが<math>\beta$ -ジケトン誘導体や $\beta$ -ケトエステ ル誘導体、B-ケトアミド誘導体又は前記ケトンの酸素 原子を硫黄原子又は-N(R201)-に置き換えたも の、クラウンエーテルやアザクラウンエーテルまたはチ アクラウンエーテルまたはクラウンエーテルの酸素原子 を任意の数硫黄原子または-N(R201)-に置き換え たクラウンエーテルを表わす場合には芳香族炭化水素環 または芳香族複素環は無くてもよい。-N(R201)-において、R201は、水素原子、置換または無置換のア 40 ルキル基、置換または無置換のアリール基を表す。] 一 般式(1)において、XaおよびYaで表される配位可 能な原子とは、具体的には酸素原子、窒素原子、硫黄原 子、セレン原子、テルル原子であり、特に酸素原子、窒 素原子、硫黄原子であることが好ましい。

【0150】一般式 (1) において、Lx、Ly、Lz で表される2個以上の結合手を持つ原子としては、特に 制限はないが、代表的には炭素原子、酸素原子、窒素原 子、シリコン原子、チタン原子等が挙げられるが、この ましいものは炭素原子である。

【0151】以下に一般式(1)で表される希土類錯体

系蛍光体の具体例を示すが、本発明はこれらに限定され \* 【0152】 るものではない。 \* 【化18】

RE-1

RE-2

RE-3

RE-4

RE-5

RE-6

RE-7

※ ※【化19】

RE-10

RE-11

RE-12

RE-16

[0154]

\* \*【化20】

57 **RE-17** 

RE-21

RE-18

RE-22

RE-19

RE-23

RE-20

RE-24

[0155]

\*【化21】

RE-26

RE-27

RE-28

[0156]

\* \*【化22】

RF-1 N<sub>III</sub> Enhuo=

# RF-2

# RF-6

# RF-3

$$(H_2O)_3^--EuV_0$$

$$O \longrightarrow CH_3$$

$$H_3C$$

RF-4

# [0157]

**RF-9** 63

RF-13

RF-10

RF-14

RF-11

RF-15

RF-12

RF-16

[0158]

\* \*【化24】

RF-21

\*などの方法により形成させ、陽極を作製する。次に、こ の上に素子材料である正孔注入層、正孔輪送層、正孔輪 送型発光層、電子輸送層、電子注入層、正孔阻止層の有 機化合物薄膜を形成させる。

陰極からなるEL素子の作製法について説明すると、ま ず適当な基体上に、所望の電極物質、例えば陽極用物質 からなる薄膜を、1μm以下、好ましくは10~200 nmの範囲の限厚になるように、蒸着やスパッタリング\*50 ェット法、蒸着法などがあるが、均質な膜が得られやす

【0159】次に、本発明の有機EL素子を作製する好

適な例を説明する。例として、陽極/正孔注入層/正孔

翰送層/正孔翰送型発光層/電子翰送層/電子注入層/

【0160】この有機化合物薄膜の薄膜化の方法として は、前記の如くスピンコート法、キャスト法、インクジ

く、かつビンホールが生成しにくいなどの点から、真空 蒸着法またはスピンコート法が特に好ましい。さらに層 ごとに異なる製膜法を適用しても良い。製膜に蒸着法を 採用する場合、その蒸着条件は、使用する化合物の種類 などにより異なるが、一般にボート加熱温度50~450℃、真空度10-6~10-2 Pa、蒸着速度0.01~50 nm/秒、基板温度-50~300℃、膜厚0.1 nm~5μmの範囲で適宜選ぶことが望ましい。

【0161】これらの層の形成後、その上に陰極用物質からなる薄膜を、1μm以下好ましくは50~200 m 10mの範囲の膜厚になるように、例えば蒸着やスパッタリングなどの方法により形成させ、陰極を設けることにより、所望のEL素子が得られる。この有機EL素子の作製は、一回の真空引きで一貫して正孔注入層から陰極まで作製するのが好ましいが、途中で取り出して異なる製膜法を施してもかまわないが、その際には作業を乾燥不活性ガス雰囲気下で行う等の配慮が必要となる。

【0162】また作製順序を逆にして、陰極、電子注入層、電子輸送層、正孔輸送型発光層、正孔輸送層、正孔 注入層、陽極の順に作製することも可能である。このよ 20 うにして得られた有機EL素子に、直流電圧を印加する場合には、陽極を+、陰極を-の極性として電圧2~4 0V程度を印加すると、発光が観測できる。また、逆の極性で電圧を印加しても電流は流れずに発光は全く生じない。さらに、交流電圧を印加する場合には、陽極が+、陰極が-の状態になったときのみ発光する。なお、印加する交流の波形は任意でよい。

【0163】上記説明した本発明の有機EL素子は、各種発光光源、照明装置、表示デバイスとして用いることができる。表示デバイスにおいて、色変換部が青色変換 30 部、緑色変換部、赤色変換部である3種の有機EL素子を用いることにより、フルカラーの表示が可能となる。【0164】表示デバイスとしてはテレビ、パソコン、モバイル機器、AV機器、文字放送表示、自動車内の情報表示等のディスプレーなどが挙げられる。特に静止画像や動画像を再生する表示装置として使用しても良く、動画再生用の表示装置として使用する場合の駆動方式は単純マトリックス(パッシブマトリックス)方式でもアクティブマトリックス方式でもどちらでも良い。

【0165】照明装置としては家庭用照明、車内照明、 時計や液晶用のバックライト、看板広告、信号機等が挙 げられるがこれに限定するものではない。

【0166】照明装置としては、有機EL素子の発光層から放出される発光をそのまま用いてもよいし、該発光の色領域に吸収を有する蛍光体を粗み合わせ色変換し、白色光としてもよい。白色光とはCIE色度図の定める白色のことである。

【0167】また、本発明の有機EL素子に共振器構造を持たせることでレーザー発振有機EL素子として用いても良い。

) 【0168】このような短波長光をレーザー発振する有機EL素子の使用目的としては光記憶媒体の光源、電子写真の光源、光通信処理機の光源、光センサーの光源等が挙げられるがこれに限定するものではない。

#### [0169]

【実施例】以下、実施例を挙げて本発明を詳細に説明するが、本発明の態様はこれに限定されない

(実施例1)ガラス基板上にITOを膜厚200nmで蒸着して陽極(シート抵抗30Ω/□)を形成した。この陽極上に、真空蒸着法により化合物1-21を膜厚33nmに蒸着して正孔輸送層を形成した。次いで、化合物3-1を膜厚33nmに蒸着して正孔輸送型発光層を形成した。更にその上にBCを膜厚33nm蒸着して電子輸送層とした。

【0170】最後に、MgとAgを共蒸着して膜厚20 0nmのMgAg(10:1)陰極を形成して有機EL 素子No.1を作製した。

[0171]

【化25】

É BC

【0172】以下に化合物1-21、化合物3-1、B Cの物性を示す。

[0173]

【表1】

09									
	化合物	膜状態での蛍光 極大波長(nm)	イオン化 ポテンシャル(eV)	電子規和力 (eV)	Tg(℃)				
正孔輸送層	1-21	393	5.4	2.2	110				
正孔輪送型発光層	3—1	398	5.7	2.5	133				
電子輸送層	BC	398	6.1	2.8	_				

【0174】作製した有機EL素子の発光特性を示す。 電界発光の発光極大波長405nm、最大輝度500cd、最大放射エネルギー16W/sr/m²であった。 【0175】外部取り出し量子効率は1.0%、CIE 色度図では(0.175,0.06)であり青紫領域であった。また、駆動電圧は4~19Vであった。

【0176】尚、外部取り出し量子効率 (%) =有機E L素子外部に発光した光子数/有機EL素子に流した電子数×100である。

【0177】尚、外部取り出し量効率の測定法は、分光 放射輝度計CS-1000により測定した発光スペクト ルを各波長の光子のエネルギーから380~780nm の光子数を求め、さらにランバーシアン仮定に基づき発 光面から発光した光子数を求めた。また、電流量から電\*

#### \*子数は求めた。

【0178】(実施例2)ガラス基板上にITOを膜厚200nmで蒸着して陽極(シート抵抗30Ω/□)を形成した。この陽極上に、真空蒸着法により化合物1-1を膜厚33nmに蒸着して正孔輸送層を形成した。次いで、化合物3-1を膜厚33nmに蒸着して正孔輸送型発光層を形成した。更にその上に化合物BCを膜厚33nm蒸着して電子輸送層とした。

20 【0179】最後に、MgとAgを共蒸着して膜厚20 OnmのMgAg(10:1)陰極を形成して有機EL 素子No.2を作製した。

【0180】以下に化合物の物性を示す。

[0181]

【表2】

_	ment of the state			17121				
		化合物		化合物 膜状態での蛍光 極大波長(rm)		イオン化 ポテンシャル(eV)	電子親和力 (eV)	Tg(C)
	正孔輪送層	1-1	395	5.6	2.3	73		
	正孔輪送型発光層	3-1	. 398	5. 7	2.5	133		
	電子輸送層	BC	398	6. 1	2.8	_		

【0182】作製した有機EL素子の発光特性を示す。 電界発光の発光極大波長405nm、最大輝度300cd、最大放射エネルギー13W/sr/m²であった。 【0183】外部取り出し量子効率は1.2%、CIE 色度図では(0.175,0.06)であり、青紫領域であった。

【0184】(実施例3)ガラス基板上にITOを膜厚 200nmで蒸着して陽極(シート抵抗30Ω/□)を 形成した。この陽極上に、真空蒸着法によりm-MTD 40 ATAを20nm蒸着して正孔注入層を形成した。次い※

※で真空蒸着法により化合物1-21を膜厚20nmに蒸着して正孔輸送層を形成した。更に化合物3-1を膜厚20nmに蒸着して正孔輸送型発光層を形成した。その上にBCを膜厚20nm蒸着して電子輸送層とした。そして、その上にAlqを20nm積層し電子輸送層とした。更にLiFO.5nmおよびAl110nmを蒸着して陰極を形成して有機EL素子No.3を作製した。【0185】以下に化合物の物性を示す。

[0186]

【表3】

7	2
,	_

	化合物	膜状態での蛍光 極大波長(nm)	イオン化 ポテンシャル(eV)	電子親和力 (eV)	Tg(℃)
正孔注入層	m-MTDATA	429	5.1	2.0	75
正孔輪送層	1-21	395	5.6	2.3	110
正孔翰送型発光層	3-1	398	5.7	2.5	133
電子輸送層	BC	397	6.1	2.8	-
電子注入層	Alg	520	5.7	3.0	167

[0187]

【化26】 m-MTDATA

- \*【0188】作製した有機EL素子の発光特性を示す。 発光極大波長405nm、最大輝度700cd、最大放 射エネルギー25W/sr/m²であった。外部取り出 し量子効率は2.1%、CIE色度図では(0.17 5,0.06)であり、青紫領域であった。
- 20 【0189】(実施例4)電子注入層を化合物2-3に 変えた以外、実施例1と同様の有機EL素子No.4を 作製した。

【0190】以下に化合物の物性を示す。

[0191]

·【表4】

Alq

40

30

	化合物	膜状態での蛍光 極大波長(nm)	イオン化 ポテンシャル(eV)	電子親和力 (eV)	Tg(℃)
正孔輸送層	1-21	393	5.4	2.2	110
正孔輪送型発光層	3-1	398	5.7	2.5	133
電子輸送層	2-3	397	6.1	2.8	130

【0192】発光極大波長405nm、最大輝度600 cd、最大放射エネルギー22W/sr/m<sup>2</sup>であった。 ※【0193】外部取り出し量子効率は1.1%、CIE 色度図では(0.175,0.06)であり青紫領域で

**※50** あった。

Tg(℃) 110 130

74

【0194】駆動電圧は4~27Vで、すべての化合物 のTgを100℃以上にする事により、実施例1に比し て安定に駆動するようになった。

73

【0195】(実施例5)ガラス基板上にITOを膜厚 200 nmで蒸着して陽極 (シート抵抗30Ω/□) を . 形成した。この陽極上に、真空蒸着法により化合物1-21を膜厚33nmに蒸着して正孔輸送層を形成した。

\*輸送型発光層を形成した。更にその上にBCを膜厚33 nm蒸着して電子輸送層とした。

【0196】最後に、MgとAgを共蒸着して膜厚20 OnmのMgAg(10:1) 陰極を形成して有機EL 素子No.5を作製した。

【0197】以下に化合物の物性を示す。

[0198]

6.1

次いで、化合物3-11を膜厚33nmに蒸着して電子\* 【表5】

	化合物	膜状態での蛍光 極大波長(m)	イオン化 ポテンシャル(eV)	電子規和力 (eV)	!
正孔輪送曆	1-21	393	5.4	2.2	_
帝ス約半部が東西	2-11	305	E 0	2.6	Ī

398

【0199】作製した有機EL素子の発光特性を示す。 電界発光の発光極大波長402nm、最大輝度300c d、最大放射エネルギー $13W/sr/m^2$ であった。 外部取り出し量子効率は1.1%、CIE色度図では (0.175, 0.06)であり、青紫領域であった。

電子輸送層

※o.1の電子輸送層BCを、Alqに変更した以外、同 様の有機EL素子No.6を作製した。すると、Ala が電子輸送型発光層となった。

2.8

[0201]

【表6】

【0200】(比較例1)実施例1の有機EL素子N ※20

	化合物	膜状態での蛍光 極大波長(nm)	イオン化 ポテンシャル(eV)			
正孔注入層	1-21	393	5.4	2.2	110	
正孔輸送層	3—1	398	5.7	2.5	133	
電子輸送型発光層	Alq	520	5.7	3.0	167	

【0202】作製した有機EL素子の発光特性を示す。 電界発光の発光極大波長518nm、最大輝度3300 cd、最大放射エネルギー8.8 $W/sr/m^2$ であっ た。また、CIE色度図では (0.30,0.50)で 30 【0204】以下に化合物の物性を示す。 あり、黄緑領域であった。

【0203】(比較例2)実施例5の有機EL素子N

★ATAに変えた以外同様にして、有機EL素子No.7 を作製した。すると、m-MTDATAが正孔輸送型発 光層となった。

[0205]

【表7】

o.5の正孔輸送層である化合物1-21をm-MTD★

	化合物	膜状態での蛍光 極大波長(nm)	イオン化 ポテンシャル(eV)	電子親和力 (eV)	Tg(℃)
正孔輪送型発光層	m-MTDATA	429	5.1	2.0	75
電子輸送層	3-11	395	5.8	2.6	130
電子注入層	Alq	520	5.7	3.0	167

【0206】作製した有機EL素子の発光特性を示す。 電界発光の発光極大波長430nm、最大輝度500c d、最大放射エネルギー4. 4W/sr/m²、CIE 色度図では(0.163,0.125)であり青領域で

【0207】(実施例6)基板上のITOの上に、正孔 注入層として化合物1-21を30nm、正孔輸送型発☆

40☆光層として化合物3-1を30nm、電子輸送層として 化合物2-7を20nm、電子注入層としてAlqを2 Onm、陰極としてLiFO. 5nmおよびAlを11 Onmを真空蒸着法により蒸着した有機EL素子No. 8を作製した。

[0208]

【表8】

	10		
(	電子規和力 (eV)	Tg(℃)	
	2.2	110	

	化合物	膜状態での蛍光 極大波長(na)	イオン化 ポテンシャル(eV)	電子規和力 (eV)	Tg(℃)
正孔注入層	1-21	393	5.4	2.2	110
正孔輪送型発光層	31	398	5.7	2.5	133
電子輸送層	2-7	395	6.2	2.9	105
電子注入層	pIA	520	5.7	3.0	167

【0209】作製した有機EL素子の発光特性は、電界 発光の発光極大波長が405 nm、外部取り出し量子効 率1.1%、最大輝度450cd、最大放射エネルギー 16W/sr/m<sup>2</sup>、CIE色度図では(0.175, 0.06)であり青紫色であった。

【0210】(実施例7)上記実施例3,4および6で 作製した有機EL素子No. 3, 4および8について、 寿命評価を行った。尚、有機EL素子No. 4および8 は有機化合物薄膜を構成する全材料のガラス転移点が1 00度以上であり、一方、有機EL素子No.3は一部 ガラス転移点が100℃をきる材料を含んでいる。

【0211】寿命の測定法は、有機EL素子をデシケー タの中に入れ、O. 1 Pa以下に減圧した。その状態 で、1.0Aにて定電流駆動させた。有機EL素子の大 20 EL2、F-EL3)。 きさは2m×2mmである。

【0212】このときの輝度を測定し、輝度が半減した ところを寿命とした。有機EL素子No.3の寿命を1 としたとき、有機EL素子No. 4および8の相対寿命 を下記表9に示す。

[0213]

【表9】

有機 LL 案子 No.	相対寿命
No. 3	1
No. 4	20
No. 8	50

【0214】有機EL素子の有機化合物薄膜を構成する 全材料のガラス転移点Tgを100℃以上とすることで 飛躍的に超寿命化したことがわかる。

【0215】(実施例8) 平均粒径5 n mのエアロジル 0.16gにエタノール15gおよびァーグリシドキシ プロピルトリエトキシシラン0.22gを加えて開放系 室温下1時間撹拌した。この混合物と無機蛍光体(GL -10) 20gとを乳鉢に移し、よくすり混ぜた後、7 40 0℃のオーブンで2時間、さらに120℃のオーブンで 2時間加熱し、表面改質した(GL-10)を得た。 【0216】また、同様にして、RL-10とBL-3 の表面改質も行った。上記の表面改質を施した本発明の 赤色発光無機蛍光体(RL-10)10gに、トルエン /エタノール=1/1の混合溶液(300g)で溶解さ れたブチラール30gを加え、撹拌した後、Wet膜厚 200 μmでガラス上に塗布した。得られた塗布済みガ ラスを100℃のオーブンで4時間加熱乾燥した。更に 赤色のカラーフィルターを張り付けることにより本発明\*50

\*の色変換フィルター (F-1)を作製した。

【0217】また、これと同じ方法で緑色発光無機蛍光 体(GL-10)を塗設し、緑色のカラーフィルターを 10 張ることで色変換フィルター (F-2)および青色発光 無機蛍光体(BL-3)を塗設し青色のカラーフィルタ ーを張ることで色変換フィルター(F-3)を作製し た。

【0218】このF-1を上記実施例で作製した本発明 の有機EL素子No. 1~5または8それぞれにおい て、有機化合物薄膜を蒸着していない面に重ねた(F-EL1)。同様にF-2、F-3枚の色変換フィルター を有機EL素子No. 1~5または8それぞれにおい て、有機化合物薄膜を蒸着していない面に重ねた (F-

【0219】F-EL1に電流を流すと青紫発光が色変 換フィルターにより色変換され赤色光になった。

【0220】F-EL2に電流を流すと青紫発光が色変 換フィルターにより色変換され緑色光になった。

【0221】F-EL3に電流を流すと青紫発光が色変 換フィルターにより色変換され青色光になった。

【0222】(実施例9) 200×700mm<sup>2</sup>のター ゲット2台を備えたマグネトロンスパッタリング装置 (島津製作所株式会社製SLC-15S型)を使用し

30 て、透明導電性フィルムを作製した。基体として厚さ1 00µmのポリアリレート透明フィルム、バリヤー性薄 膜用ターゲットとしてSiO1.5、透明導電性薄膜用タ ーゲットとして酸化スズ比10%のITO、スパッタガ スとしてバリヤー性薄膜はアルゴンのみで総ガス圧1. 4mTorr、ガス流量100sccm (sccm:s tandard cc/min(1×10<sup>-6</sup> m<sup>3</sup>/mi n))、透明導電性薄膜ではアルゴンに酸素を1%加え たもので総ガス圧5mTorr、ガス流量50scc m、パワー条件としてバリヤー薄膜はRF1000W (1.11W/cm²)、透明導電性薄膜はDCO.5 A、300V(0.17W/cm2)となるようにして 成膜を行った。バリヤー性薄膜は7.5分処理し厚さ4 0 nm、透明導電性薄膜は30分処理し厚さ100 n m、シート抵抗50Ω/□の透明樹脂フィルムを得た。 【0223】このプラスチック基体を用いて、後は実施 例8と同様にして有機EL素子を作製した。

【0224】これらの有機EL素子は、湾曲させること が可能であり、フレキシブルデバイスに適用できる。 【0225】(実施例10)以下、上記実施例9で作製 した本発明の有機E L素子から構成される本発明の表示 装置の一例を図面に基づいて以下に説明する。実施例9 で作製した有機EL素子は、基体として樹脂フィルムを 用いており、且つ、色変換部を有するものであり、赤色 光を発するもの、緑色光を発するもの、青色光を発する ものの3種類である。

77

【0226】図1は、有機EL素子の発光により画像情 報の表示を行う、例えば、携帯電話等のディスプレイの 模式図である。

【0227】ディスプレイ1は、複数の画素3を有する 表示部A、画像情報に基づいて表示部Aの画像走査を行 10 う制御部B等からなる。

【0228】制御部Bは、表示部Aと電気的に接続さ れ、複数の画素3それぞれに外部からの画像情報に基づ いて走査信号と画像データ信号を送り、走査信号により 走査線毎の画素3が画像データ信号に応じて順次発光し て画像走査を行って画像情報を表示部Aに表示する。

【0229】図2は、表示部Aの模式図である。表示部 Aは基体上に、複数の走査線5およびデータ線6を含む 配線部と、複数の画素3等とを有する。表示部Aの主要 な部材の説明を以下に行う。

【0230】図においては、画素3の発光した光が、白 矢印方向 (下方向)へ取り出される場合を示している。 【0231】配線部の走査線5および複数のデータ線6 は、それぞれ導電材料からなり、走査線5とデータ線6 は格子状に直交して、直交する位置で画素3に接続して いる(詳細不図示)。

【0232】画素3は、走査線5から走査信号が印加さ れると、データ線6から画像データ信号を受け取り、受 け取った画像データに応じて発光する。発光の色が赤色 の画素、緑色の画素、青色の画素を、適宜、同一基体上 30 に並置することによって、フルカラー表示が可能とな

【0233】次に、西素3の発光プロセスを説明する。 図3は、画素3の模式図である。

【0234】画素3は、有機EL素子10、スイッチン グトランジスタ11、駆動トランジスタ12、コンデン サ13等を備えている。

【0235】図において、制御部Bからデータ線6を介 してスイッチングトランジスタ11のドレインに画像デ を介してスイッチングトランジスタ11のゲートに走査 信号が印加されると、スイッチングトランジスタ11の 駆動がオンし、ドレインに印加された画像データ信号が コンデンサ13と駆動トランジスタ12のゲートに伝達 される。

【0236】画像データ信号の伝達により、コンデンサ 13が画像データ信号の電位に応じて充電されるととも に、駆動トランジスタ12の駆動がオンする。駆動トラ ンジスタ12は、ドレインが電源ライン7に接続され、

78 ートに印加された画像データ信号の電位に応じて電源ラ イン7から有機EL素子10に電流が供給される。

【0237】制御部Bの順次走査により走査信号が次の 走査線5に移ると、スイッチングトランジスタ11の駆 動がオフする。しかし、スイッチングトランジスタ11 の駆動がオフしてもコンデンサ13は充電された画像デ ータ信号の電位を保持するので、駆動トランジスタ12 の駆動はオン状態が保たれて、次の走査信号の印加が行 われるまで有機EL素子10の発光が継続する。 順次走 査により次に走査信号が印加されたとき、走査信号に同 期した次の画像データ信号の電位に応じて駆動トランジ スタ12の駆動して有機EL素子10が発光する。

【0238】すなわち、有機EL素子10の発光は、複 数の画素3それぞれの有機EL素子10に対して、アク ティブ素子であるスイッチングトランジスタ11と駆動 トランジスタ12を設けて、複数の画素3それぞれの有 機EL素子10の発光を行っている。このような発光方 法をアクティブマトリクス方式と呼んでいる。

【0239】ここで、有機EL素子10の発光は、複数 20 の階調電位を持つ多値の画像データ信号による複数の階 調の発光でも良いし、2値の画像データ信号による所定 の発光量のオン、オフでも良い。

【0240】また、コンデンサ13の電位の保持は、次 の走査信号の印加まで継続して保持しても良いし、次の 走査信号が印加される直前に放電させても良い。

【0241】本発明においては、上述したアクティブマ トリクス方式に限らず、走査信号が走査されたときのみ データ信号に応じて有機EL素子を発光させるパッシブ マトリクス方式の発光駆動でも良い。

【0242】図4は、パッシブマトリクス方式によるデ ィスプレイAの模式図である。図において、複数の走査 線5と複数の画像データ線6が画素3を挟んで対向して 格子状に設けられている。

【0243】順次走査により走査線5の走査信号が印加 されたとき、印加された走査線5に接続している画素3 が画像データ信号に応じて発光する。

【0244】パッシブマトリクス方式では画素3にアク ティブ素子が無く、製造コストの低減が計れる。

【0245】(実施例11)実施例8の無機蛍光体をB ータ信号が印加される。そして、制御部Bから走査線5 40 L-10:GL-10:RL-10=10:90:45 の割合で混ぜた。この混ぜ合わせた蛍光体10gに、ト ルエン/エタノール=1/1の混合溶液(300g)で 溶解されたブチラール30gを加え、攪拌した後、We t膜厚200μmでガラス上に塗布した。 得られた塗布 済みガラスを100℃のオーブンで4時間加熱乾燥し本 発明の色変換フィルター(F-4)を作製した。

> 【0246】このF-4を有機EL素子No. 1の有機 層を蒸着していない面に重ねた(F-EL4)。

【0247】F-EL4に電流を流すと青紫発光が色変 ソースが有機EL素子10の電極に接続されており、ゲ 50 換フィルターにより色変換され白色光となった。

【図3】 画素の模式図である。 【図4】パッシブマトリクス方式による表示装置の模式

【0248】上記F-EL4から構成される白色光の照 明装置を作製したところ、このように無機蛍光体の混合 したものを色変換部として用いることにより、所望の色 を発光させることあ可能となった。これは、従来の有機 EL素子のように、デバイスの層構成を調整するより簡 単である。

### 【符号の説明】

1 ディスプレイ

3 画素

図である。

5 走査線

6 データ線

7 電源ライン

11 スイッチングトランジスタ

12 駆動トランジスタ

13 コンデンサ

A 表示部 (ディスプレイ)

B 制御部

### [0249]

【発明の効果】省電力で面状発光し、フレキシブルデバ イスの作製が可能であり、発光効率が高い発光極大波長 が415nm以下の有機EL素子、該有機EL素子を用 10 10 有機EL素子 いた発光光源、照明装置、表示デバイスを提供すること が出来た。

### 【図面の簡単な説明】

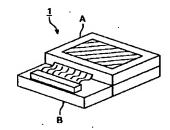
【図1】有機EL索子から構成される表示装置の一例を 示した模式図である。

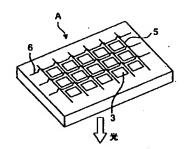
【図2】表示部の模式図である。

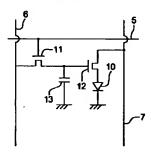
【図1】



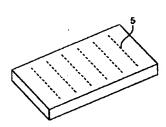
【図3】

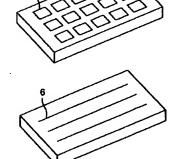






【図4】





#### フロントページの続き

(51) Int. CI.	<b>報別記号</b>	FI					Ī	-47-1	'(多考	;)
H05B	33/12	H05B	33/12	2			E			
	33/22		33/22	:			В			
							D			
(72)発明者	植田 則子	Fターム(	参考)	3K007	AB03	AB04	AB12	AB18	BA06	
	東京都日野市さくら町1番地コニカ株式会	.•					CA06	CB01	DAO1	
	社内				DB03	EB00				
(72)発明者	北 弘志			50094	AA08	AA31	BA12	BA27	BA32	
•	東京都日野市さくら町1番地コニカ株式会				CA19	CA24	DA06	DA13	DB01	
	社内				DBO2	DB04	<b>EA04</b>	EA05	EB02	
	•				ED20	FA01	FA02	FB01	FB02	
	•				JA11					